

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-224774
(43)Date of publication of application : 12.08.2004

(51)Int.Cl. C07D487/14
C09K 11/06
C09K 19/34
H05B 33/14

(21)Application number : 2003-017841 (71)Applicant : MITSUBISHI RAYON CO LTD
(22)Date of filing : 27.01.2003 (72)Inventor : IKEDA TOMIKI
KAWAMOTO MASUKI
RI YOSHIMI
MAEDA SHINICHI
SAITO TAKASHI

(54) INDOLE DERIVATIVE TRIMER, METHOD FOR PRODUCING THE SAME AND LIGHT-EMITTING ELEMENT USING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a new compound having an indole trimer skeleton useful as a material for a light-emitting element, having a stable film-forming property, and especially useful as a light-emitting material, a hole-transporting material and an electron-transporting material.

SOLUTION: This indole derivative trimer having an oxadiazole group and the indole derivative trimer having a thiadiazole group having a high luminance, high light-emitting efficiency, long life and a good film-forming property and the indole derivative trimer having tetrazole group which becomes their intermediate, and methods for producing them are provided. Thereby, it becomes possible to provide the light-emitting element having a simple structure and capable of satisfying the luminance, light-emitting efficiency, long life and film-forming property.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]
[Date of sending the examiner's decision of rejection]
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]
[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-224774

(P2004-224774A)

(43) 公開日 平成16年8月12日(2004.8.12)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C07D 487/14	C07D 487/14	3K007
C09K 11/06	C09K 11/06 645	4C050
C09K 19/34	C09K 11/06 655	4H027
H05B 33/14	C09K 19/34	
	H05B 33/14 B	
審査請求 未請求 請求項の数 31 O L (全 44 頁)		

(21) 出願番号	特願2003-17841 (P2003-17841)	(71) 出願人	000006035 三菱レイヨン株式会社 東京都港区港南一丁目6番41号
(22) 出願日	平成15年1月27日 (2003.1.27)	(72) 発明者	池田 高樹 神奈川県横浜市旭区中白根2-11-18
		(72) 発明者	川本 益揮 神奈川県横浜市青葉区奈良町2913 4-104
		(72) 発明者	李 善美 神奈川県横浜市中区若葉町3-43-1-809
		(72) 発明者	前田 晋一 神奈川県横浜市鶴見区大黒町10番1号 三菱レイヨン株式会社化成品開発研究所内
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 インドール誘導体三量体とその製造方法、及びそれを用いた発光素子

(57) 【要約】

【課題】本発明は、発光素子用材料として、安定した成膜性を有し、特に発光材料、正孔輸送材料、電子輸送材料として有用な、インドール三量体骨格を有する新規化合物とその製造方法を提供することを目的とする。本発明により、構造がシンプルで、輝度、発光効率、長寿命化、成膜性について満足できる発光素子の提供が可能となる。

【解決手段】高輝度、高発光効率、長寿命化、成膜性が良好な、オキサジアソール基を有するインドール誘導体三量体及び、チアジアソール基を有するインドール誘導体三量体、並びにその中間体となるテトラソール基を有するインドール誘導体三量体、とその製造方法、及びそれを用いた発光素子。

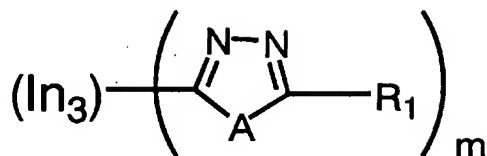
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式(1)

【化 1】



(1)

10

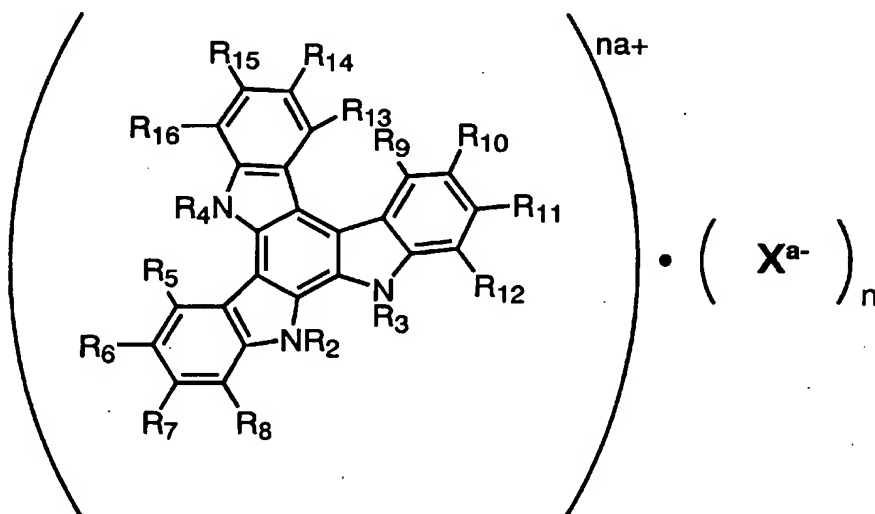
(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の 2 位及び 3 位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 価のインドール誘導体三量体基) である。また、 A は酸素原子あるいは硫黄原子である。 R_1 は炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1~3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 m は結合数を表し、1~12 である。) で示されるインドール誘導体三量体。

20

【請求項 2】

前記一般式(1)中の In_3 が、下記一般式(2)

【化 2】



30

40

(2)

(式中、 $\text{R}_2 \sim \text{R}_4$ は、水素、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また $\text{R}_5 \sim \text{R}_{16}$ は、水素、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2~30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2~30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群が

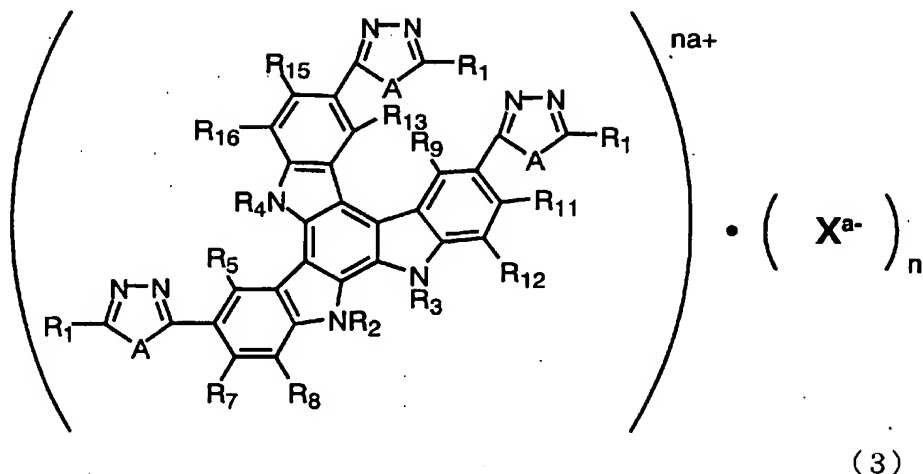
50

らそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 In_3 は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で $0 \sim 3$ である。) で示される請求項 1 記載のインドール誘導体三量体。

【請求項 3】

前記一般式 (1) が、下記一般式 (3)

【化 3】

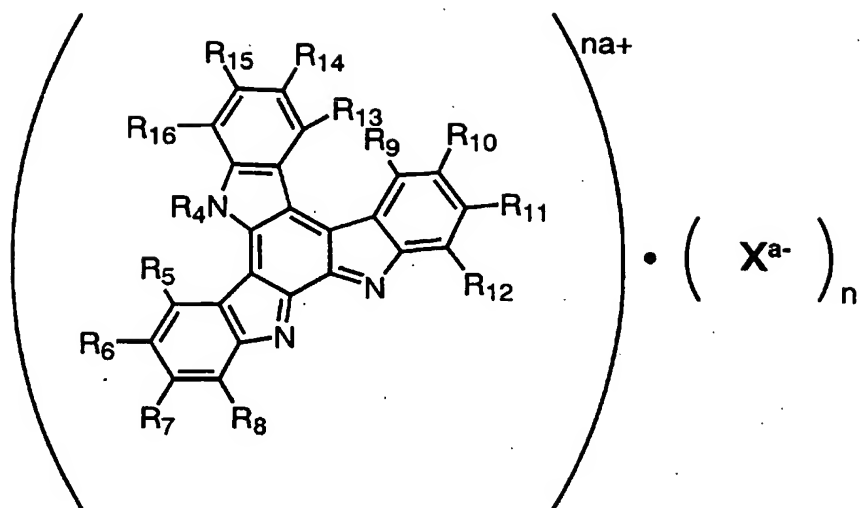


(式中、 R_1 は、炭素数 $1 \sim 30$ の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、 $1 \sim 3$ 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 $1 \sim 30$ の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 $1 \sim 30$ の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 $1 \sim 30$ の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 $2 \sim 30$ の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 $2 \sim 30$ の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 $1 \sim 30$ の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。 A は、酸素原子あるいは硫黄原子である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で $0 \sim 3$ である。) で示される請求項 1 記載のインドール誘導体三量体。

【請求項 4】

前記一般式 (1) 中の In_3 が、下記一般式 (4)

【化 4】



10

(4)

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 In_3 は m 価の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示される請求項 1 記載のインドール誘導体三量体

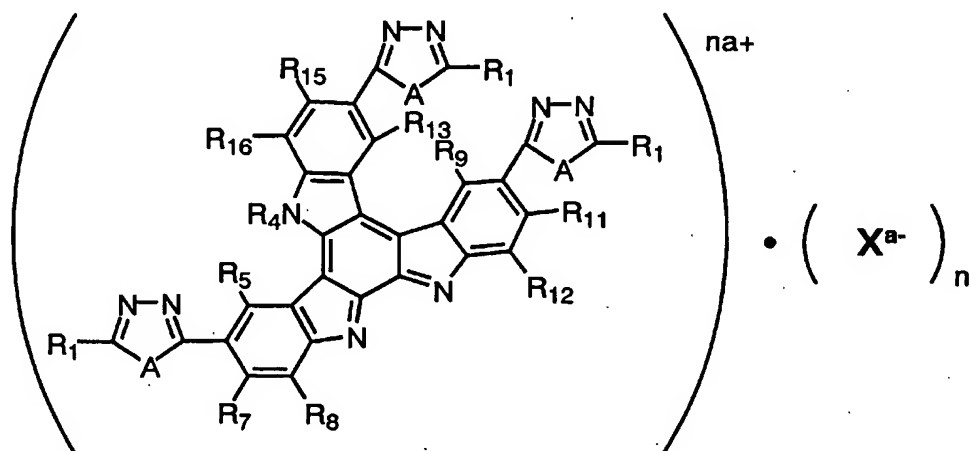
20

30

【請求項 5】

前記一般式 (1) が、下記一般式 (5)

【化 5】



40

(5)

(式中、 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳

50

香族複素環基、1～3級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 R_4 は、水素、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数2～30の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数2～30の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数1～30の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。 A は、酸素原子あるいは硫黄原子である。また、 $X^{\alpha-}$ は、少なくとも一種の陰イオンであり、 α は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率を0～3である。)で示される請求項1記載のインドール誘導体三量体。

10

【請求項6】

前記 R_1 が、炭素数1～30の芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた基であることを特徴とする請求項1～5いずれか一項記載のインドール誘導体三量体。

【請求項7】

前記 R_1 が、3級アミン含有基であることを特徴とする請求項1～5いずれか一項記載のインドール誘導体三量体。

【請求項8】

前記 R_1 中の3級アミン含有基が、芳香族炭化水素基及び/または芳香族複素環基で置換されていることを特徴とする請求項7記載のインドール誘導体三量体。

20

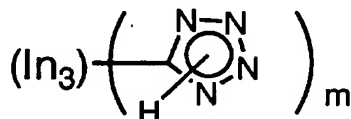
【請求項9】

前記 A が、酸素原子であることを特徴とする請求項1～8いずれか一項記載のインドール誘導体三量体。

【請求項10】

下記一般式(6)

【化6】



30

(6)

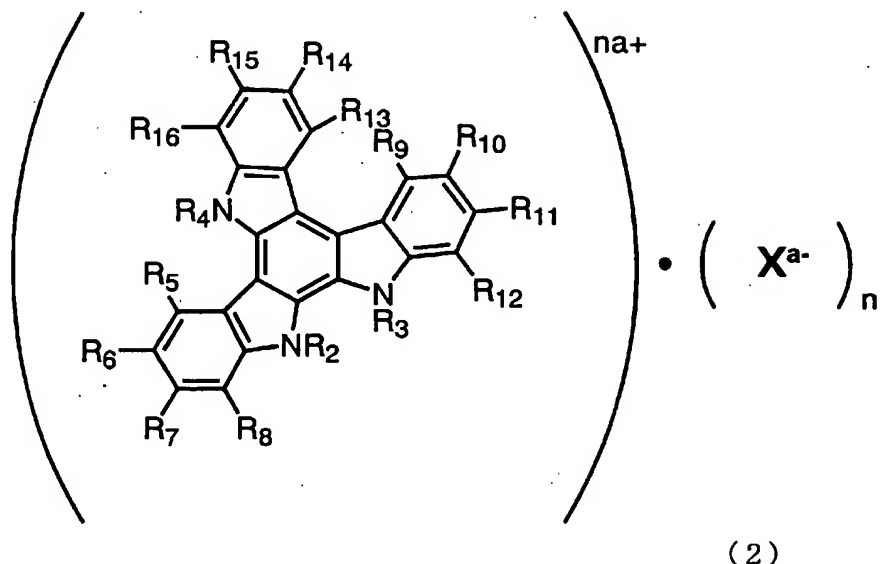
(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造(m 個のインドール誘導体三量体基)である。また、 m は結合数を表し、1～12である。)で示されるインドール誘導体三量体。

40

【請求項11】

前記一般式(6)中の In_3 が、下記一般式(2)

【化 7】



10

(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 $1n_3$ は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0 ～ 3 である。) で示される請求項 10 記載のインドール誘導体三量体。

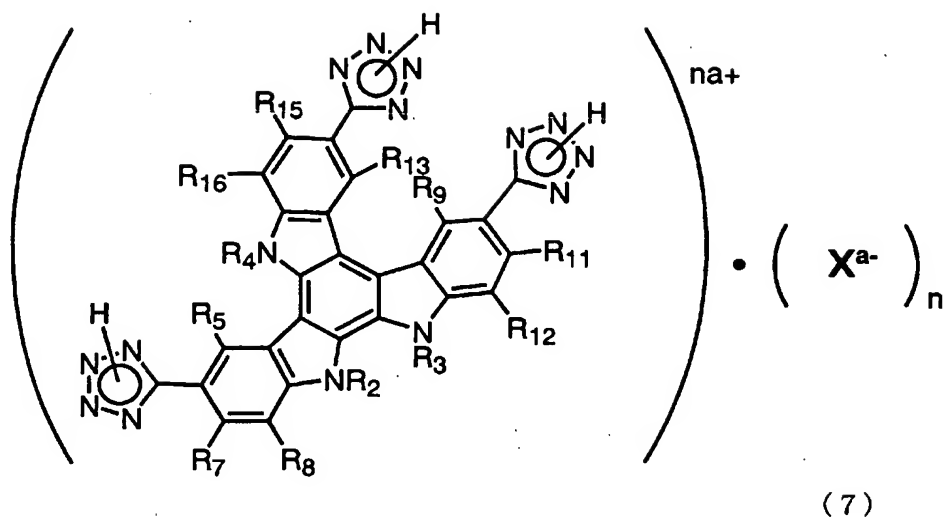
20

30

【請求項 12】

前記一般式 (6) が、下記一般式 (7)

【化 8】



10

(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示される請求項 10 記載のインドール誘導体三量体。

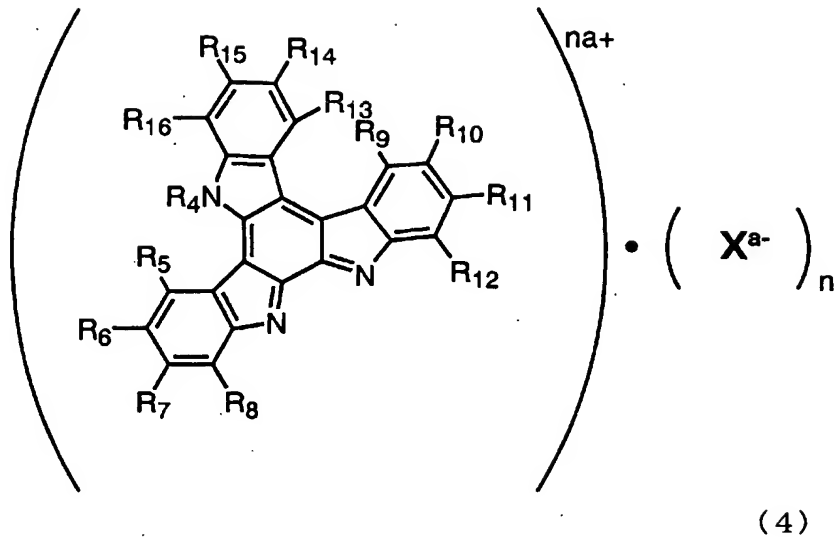
20

30

【請求項 13】

前記一般式 (6) 中の In_3 が、下記一般式 (4)

【化 9】



10

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から独立に選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 $1n_3$ は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示される請求項 10 記載のインドール誘導体三量体。

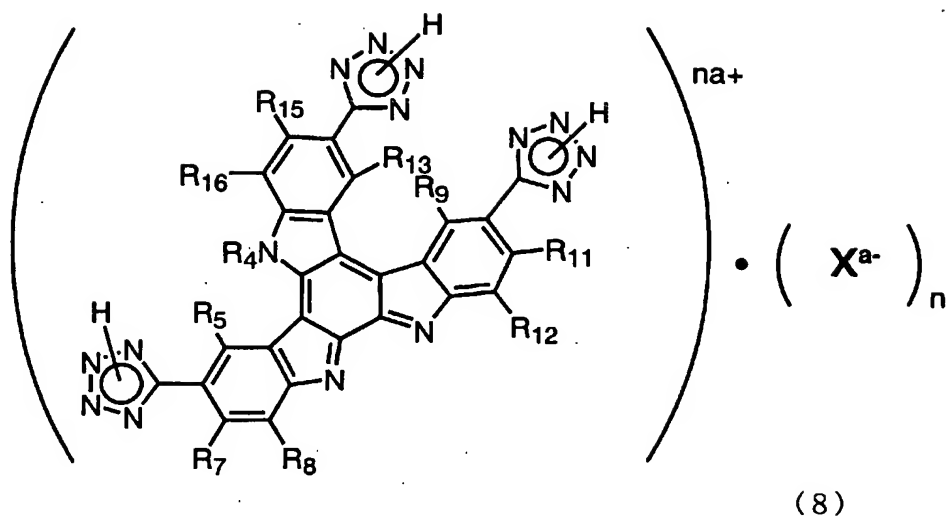
20

30

【請求項 14】

前記一般式 (6) が、下記一般式 (8)

【化 1 0】



10

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示される請求項 10 記載のインドール誘導体三量体。

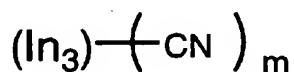
20

【請求項 15】

30

下記一般式 (9)

【化 1 1】

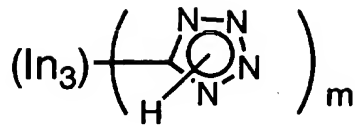


(9)

40

(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の 2 位及び 3 位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 価のインドール誘導体三量体基) である。また、 m は結合数を表し、1～12 である。) で示されるカルボニトリル化合物を、アジド化合物と反応させることによって、下記一般式 (6)

【化 1 2】



(6)

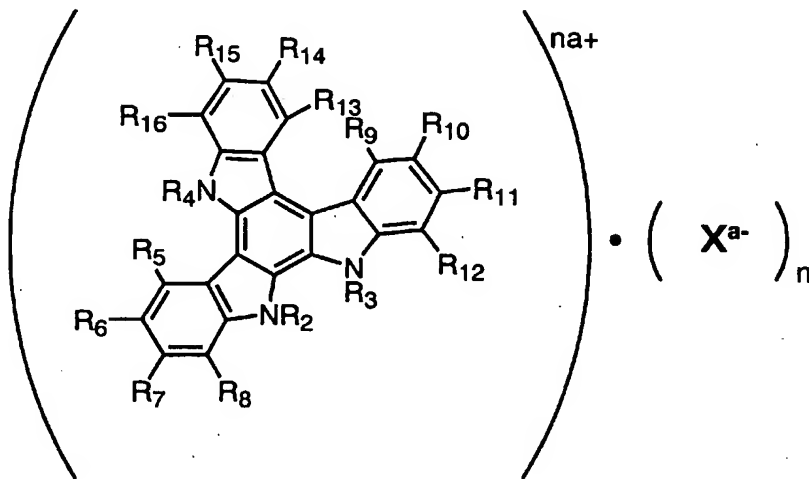
10

(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の 2 位及び 3 位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 個のインドール誘導体三量体基) である。また、 m は結合数を表し、1~12 である。) で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 16】

前記一般式 (6) 及び (9) 中の In_3 が、下記一般式 (2)

【化 1 3】



20

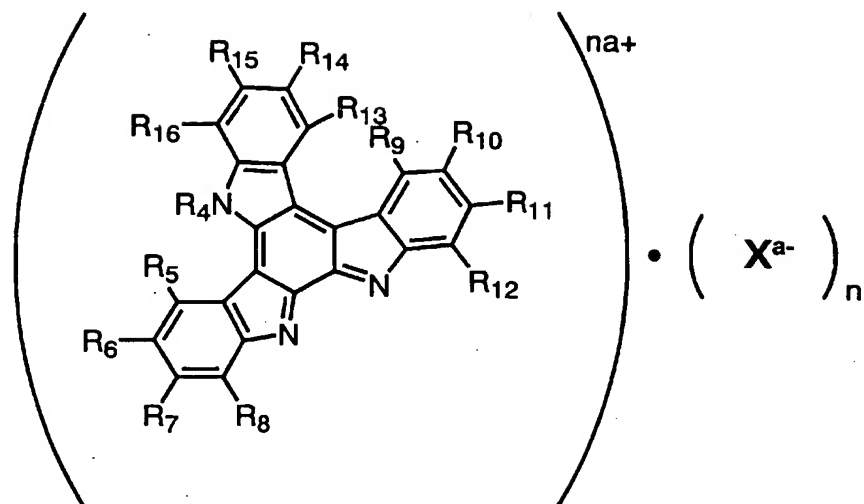
30

(2)

(式中、 $\text{R}_2 \sim \text{R}_4$ は、水素、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また $\text{R}_5 \sim \text{R}_{16}$ は、水素、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2~30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2~30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1~30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $\text{R}_5 \sim \text{R}_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 In_3 は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0~3 である。) で示される主構造または、下記一般式 (4)

40

【化 1 4】



10

(4)

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 $1n_3$ は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n ドーア率で 0～3 である。) で示される主構造であることを特徴とする請求項 15 記載のテトラソール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

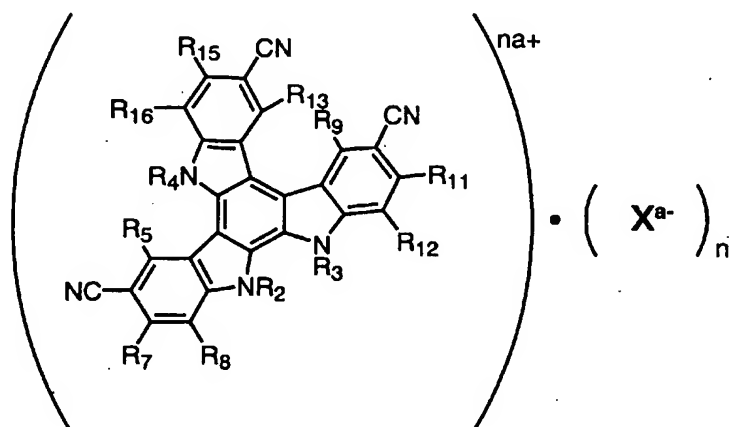
20

30

【請求項 17】

前記一般式 (9) が、下記一般式 (10)

【化 1 5】



40

(10)

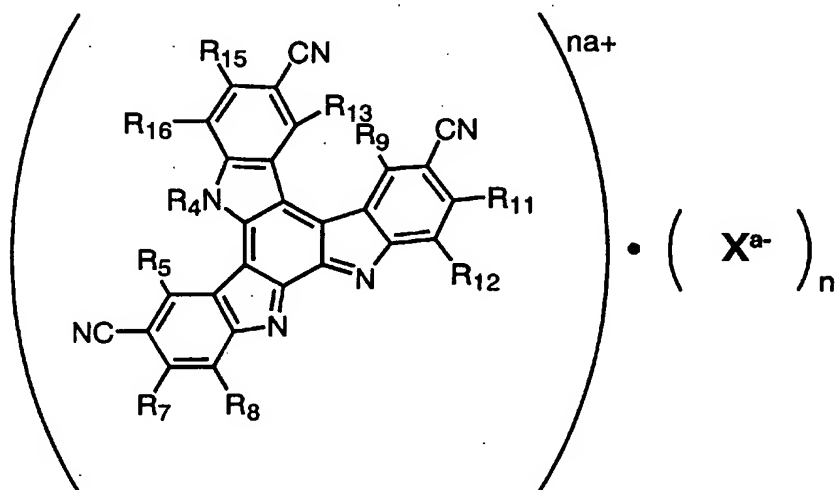
(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭

50

化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0 ～ 3 である。) で示されるカルボニトリル化合物または、下記一般式 (11)

【化 16】

10



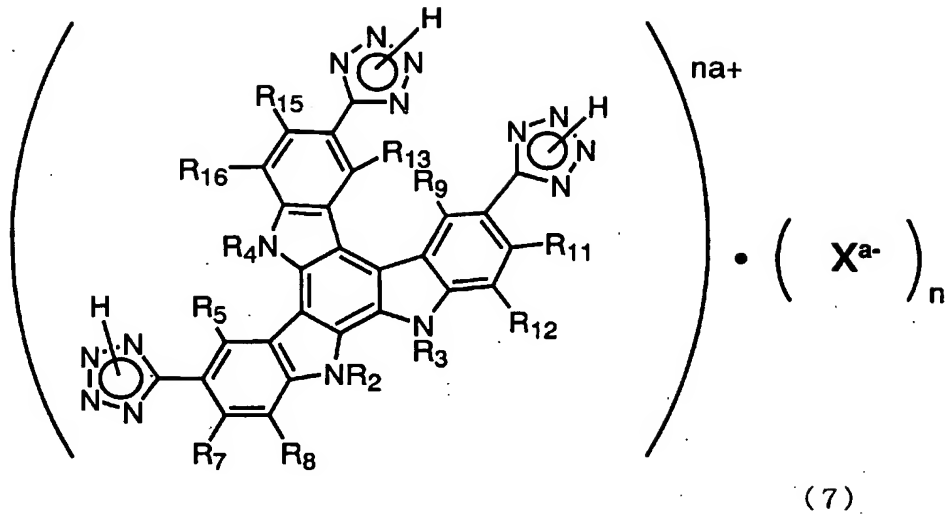
20

(11)

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0 ～ 3 である。) で示されるカルボニトリル化合物であり、前記一般式 (6) が、下記一般式 (7)

30

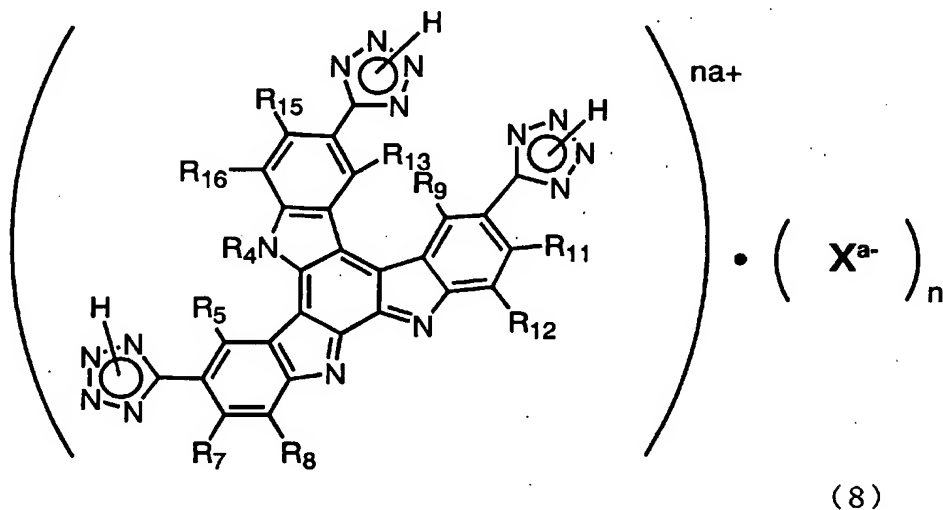
【化 1 7】



(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率 $0 \sim 3$ である。) で示されるテトラソール基を有するインドール誘導体三量体または、

下記一般式 (8)

【化 1 8】



(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1 ～ 30 の

50

直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数2～30の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数2～30の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数1～30の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で0～3である。)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体であることを特徴する請求項15記載のテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項18】

前記アジド化合物が、ナトリウムアジドであることを特徴とする請求項15～17いずれか一項記載のテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

10

【請求項19】

前記アジド化合物が、下記一般式(12)

【化19】



(12)

20

(式中、 $R_{17} \sim R_{19}$ は、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、及び芳香族基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。)で示される有機スズアジド化合物であることを特徴とする請求項15～17いずれか一項記載のテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項20】

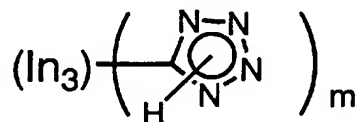
アンモニウム塩あるいはアミン塩を添加することを特徴とする請求項15～19いずれか一項記載のテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

30

【請求項21】

下記一般式(6)

【化20】

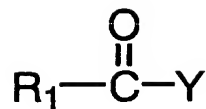


(6)

40

(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造(m 価のインドール誘導体三量体基)である。また、 m は結合数を表し、1～12である。)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体を、下記一般式(13)

【化 2 1】

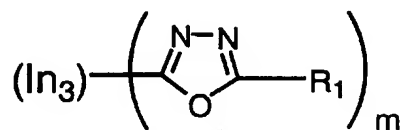


(13)

10

(式中、 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 Y は、ハロゲン原子を表す。) で示される酸ハライド化合物と反応させることによって、下記一般式 (14)

【化 2 2】



(14)

20

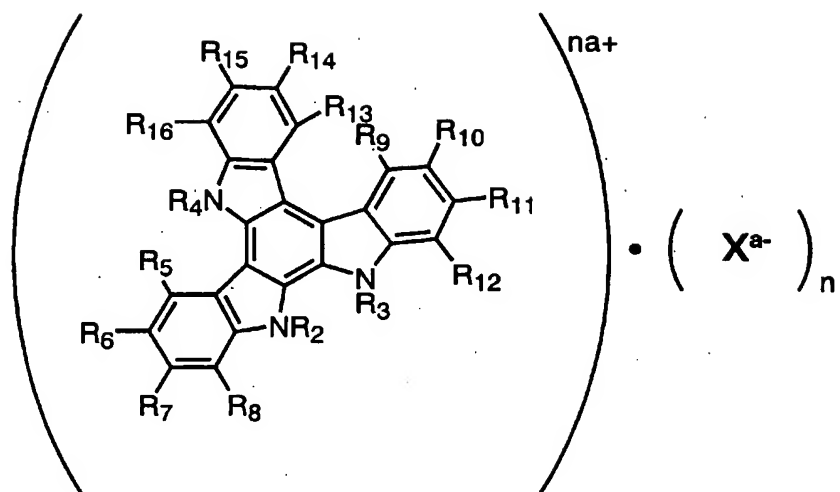
(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の 2 位及び 3 位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 価のインドール誘導体三量体基) である。 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 m は、結合数を表し、1～12 である。) で示されるオキシジアソール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

30

【請求項 22】

前記一般式 (6) 及び (14) 中の In_3 が、下記一般式 (2)

【化 2 3】



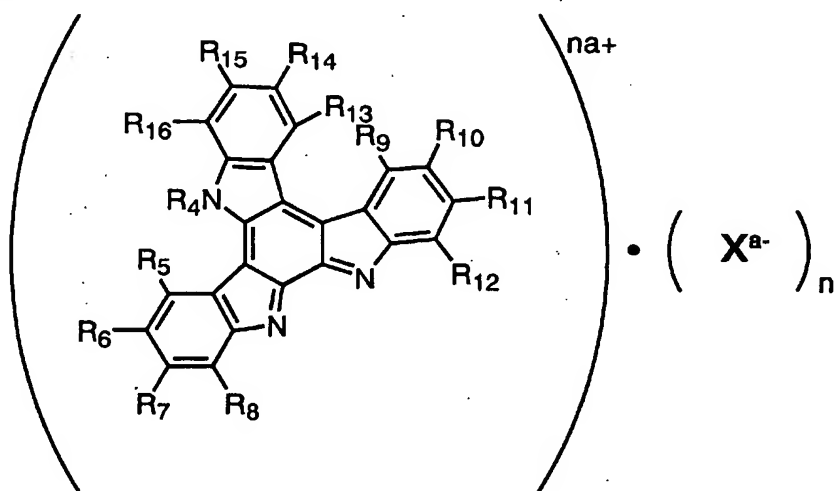
10

(2)

(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ～ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内、 m 個は置換基を持たず、 $1n_3$ は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0 ～ 3 である。) で示される主構造または、下記一般式 (4)

30

【化 2 4】



40

(4)

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1 ～ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である

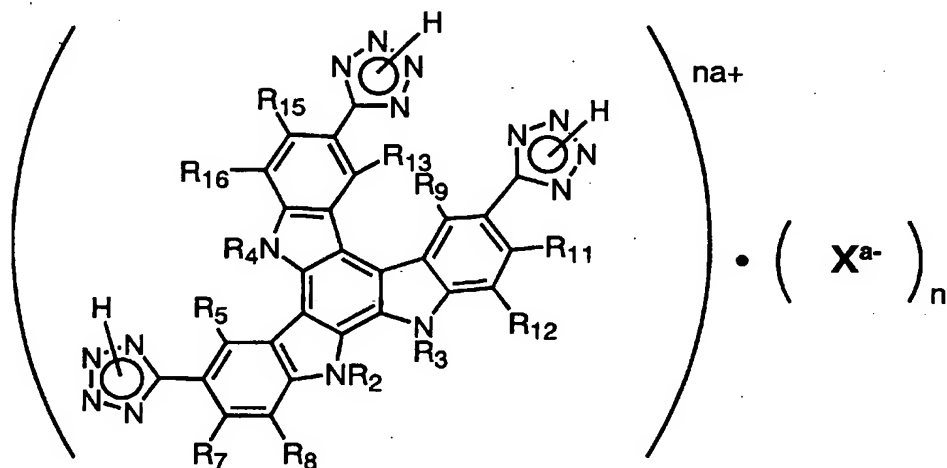
50

。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内、 m 個は置換基を持たず、 In_3 は m 価の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示される主構造であることを特徴とする請求項 21 記載のオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 23】

前記一般式 (6) が、下記一般式 (7)

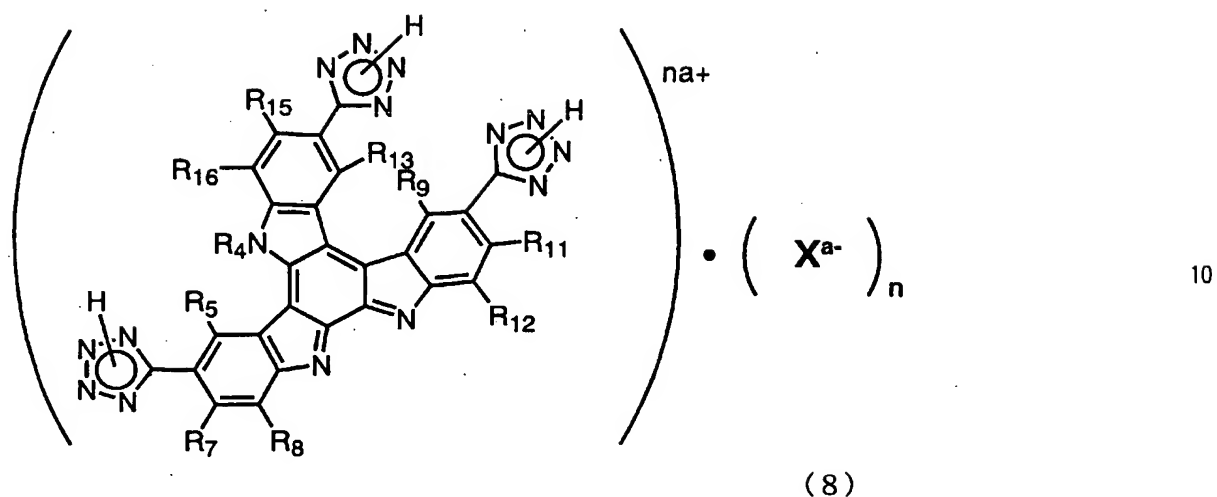
【化 25】



(7)

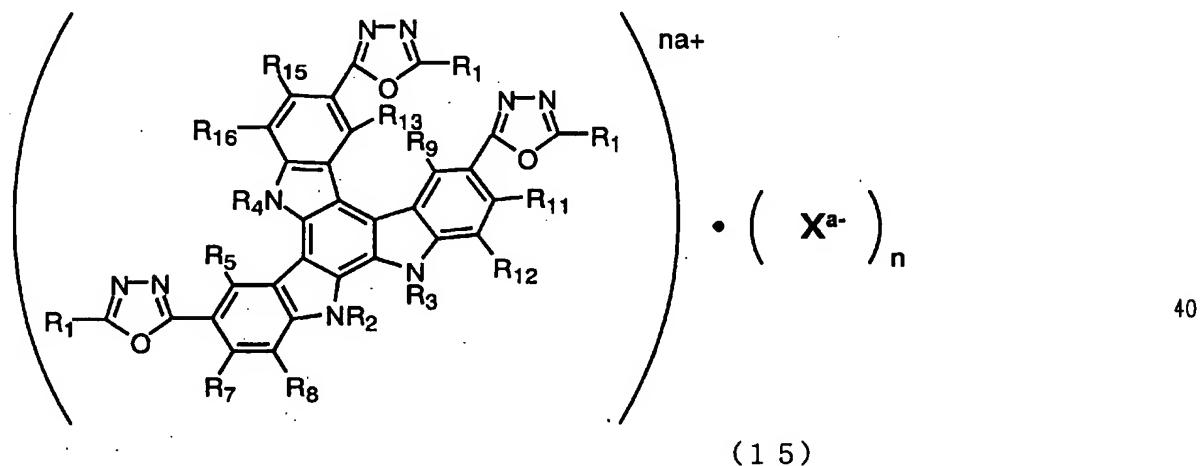
(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体または、下記一般式 (8)

【化 2 6】



(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体であり、前記一般式 (14) が、下記一般式 (15)

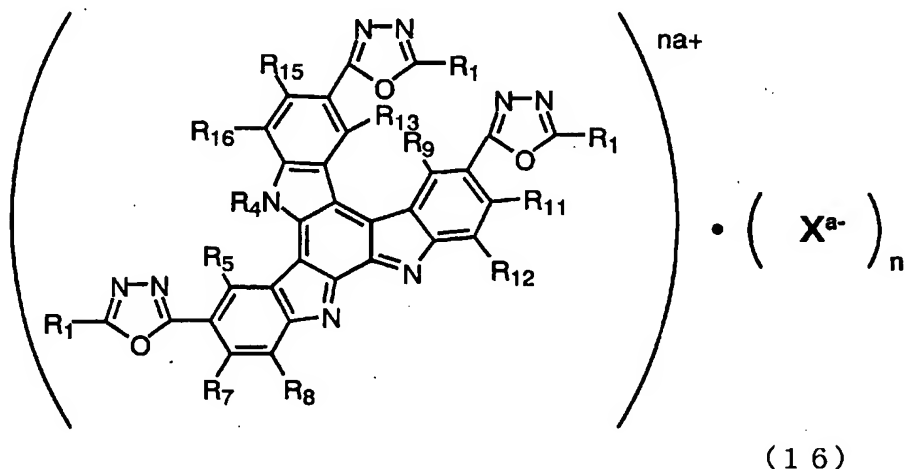
【化 2 7】



(式中、 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族

炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示されるオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体または、下記一般式 (16)

【化 28】



(16)

(式中、 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立の選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) で示されるオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体であることを特徴する請求項 21 記載のオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 24】

前記 R_1 が、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基であることを特徴とする請求項 21～23 いずれか一項記載のオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 25】

前記 R_1 が、3 級アミン含有基であることを特徴とする請求項 21～24 いずれか一項記載のオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 26】

前記 R_1 中の 3 級アミン含有基が、芳香族炭化水素基及び／または芳香族複素環基で置換されていることを特徴とする請求項 21～25 いずれか一項記載のオキサジアゾール基を

有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 27】

前記 Y が、塩素原子であることを特徴とする請求項 21～26 いずれか一項記載のオキサジアソール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 28】

塩基性化合物を添加することを特徴とする請求項 21～27 いずれか一項記載のオキサジアソール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法。

【請求項 29】

請求項 1～14 いずれか一項に記載した少なくとも一つのインドール誘導体三量体を含有する液晶組成物。

10

【請求項 30】

対向する陽極と陰極の間に有機層を有する発光素子において、該有機層の少なくとも一つが請求項 1～14 いずれか一項記載のインドール誘導体三量体を含有することを特徴とする発光素子。

【請求項 31】

対向する陽極と陰極の間に有機層を有する発光素子において、発光材料として三重項励起状態からの発光が可能な発光材料が含まれていることを特徴とする請求項 30 記載の発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

20

【発明の属する技術分野】

本発明はインドール三量体骨格を有する新規化合物とその製造方法に関するものである。該新規インドール誘導体三量体化合物は、各種帯電防止、制電、コンデンサ、電池、EMI シールド、化学センサー、表示素子、有機 EL 材料、液晶材料、非線形材料、フォトリフラクティブ材料、防錆剤、接着剤、繊維、帯電防止塗料、電着塗装、メッキプライマー、静電塗装用導電性プライマー、電気防食等に幅広く適用可能である。その中でも特に、構造がシンプルで、輝度、発光効率、長寿命化、成膜性について満足できる発光素子の提供が可能となる。

【0002】

【従来の技術】

30

硫化亜鉛などの無機化合物を用いた無機エレクトロルミネッセンス素子は、自発光型のため液晶ディスプレイ (LCD) に比べて視野角が広く、高コントラストなどの利点を持っているが、カラー化が進まず、また製造工程が複雑で、駆動電位も高いという課題がある。

【0003】

一方、有機化合物を用いたアントラセンなどの発光材料は、古くから研究されているが、高電圧を印加する割には輝度や発光効率が低く、安定性も低いものであった。

【0004】

しかし、近年、上記問題点の改良のため、有機薄膜を用いた電界発光素子の開発が行われるようになった。1987年には米国イーストマンでは 8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体から成る有機発光層と芳香族ジアミンから成る有機正孔輸送層の 2 層積層型構造の有機電界発光素子 (有機 EL 素子) を開発し (A P P L. P h y s. L e t t. , 51 巻, 913 頁, 1987 年)、従来のアントラセン等の単結晶を用いた EL 素子と比較して発光効率の改善がなされたが、安定性 (駆動寿命) などに課題を残している。

40

【0005】

上記の様な低分子有機化合物を用いた電界発光素子の他にも、有機発光層の材料として、ポリ (p-フェニレンビニレン) (N a t u r e , 347 巻, 539 頁, 1990 年他)、ポリ [2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン] (A P P L. P h y s. L e t t. , 58 巻, 1982 頁他)、ポリ (3-アルキルチオフェン) (J P n. J. A P P L. P h y s. , 30 巻, L1938 頁他) 等の高分子

50

材料を用いた電界発光素子の開発や、ポリビニルカルバゾール等の高分子に低分子の発光材料と電子移動材料を混合した素子（応用物理、61巻、1044頁、1992年）の開発も報告されているが、高輝度化、高効率化、長寿命化、低コスト化などの実用的な材料は少ない。

【0006】

一方、インドール誘導体であるインドール-5-カルボニトリル、インドール-5-カルボン酸をアセトニトリル中において電解酸化重合する方法【Phon S. Chem. Chem. P h n S. , 2, 1241-1248 (2000)】により電極上にインドール誘導体三量体を形成することが報告されており、これら化合物が蛍光性を有することが報告されており、応用例として有機エレクトロルミネッセンスへの適用も記載されているが、具

10

【0007】

また、インドールがすべて同一方向を向いて結合している対称型トリインドール誘導体（特開2001-261680号公報）やそれらからなるポリマー（特開2001-288239号公報）が提案されている。これらの化合物の応用例として有機エレクトロルミネッセンスへの適用も記載されているが、具体的な素子、その構成及び製造方法についての記載はない。また、対称型のため平面性が高いため、アモルファス性が十分とはいえず、薄膜化などに課題がなお残っている。

【0008】

このように、従来技術で得られる無置換インドール三量体や置換インドール三量体では、輝度、発光効率、長寿命化、成膜性が不充分であり、これらの課題点を解決するインドール誘導体三量体の開発が、当該分野では重要な課題となっていた。

20

【特許文献1】特開2001-261680号公報

【特許文献2】特開2001-288239号公報

【非特許文献1】Phon S. Chem. Chem. P h n S. , 2, 1241-1248 (2000)

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、発光素子用材料として、安定した成膜性を有し、特に発光材料、正孔輸送材料、電子輸送材料として有用である、インドール三量体骨格を有する新規化合物とその製造方法を提供することを目的とする。本発明により、構造がシンプルで、輝度、発光効率、長寿命化、成膜性について満足できる発光素子の提供が可能となる。

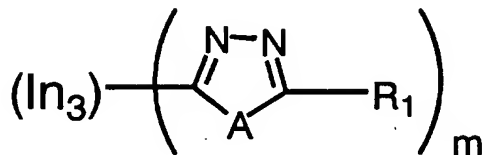
30

【0010】

【課題を解決するための手段】

本発明の第一は、下記一般式(1)

【化29】



(1)

40

（式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造（ m 個のインドール誘導体三量体基）である。また、 A は酸素原子あるいは硫黄原子である。 R_1 は炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～8級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる

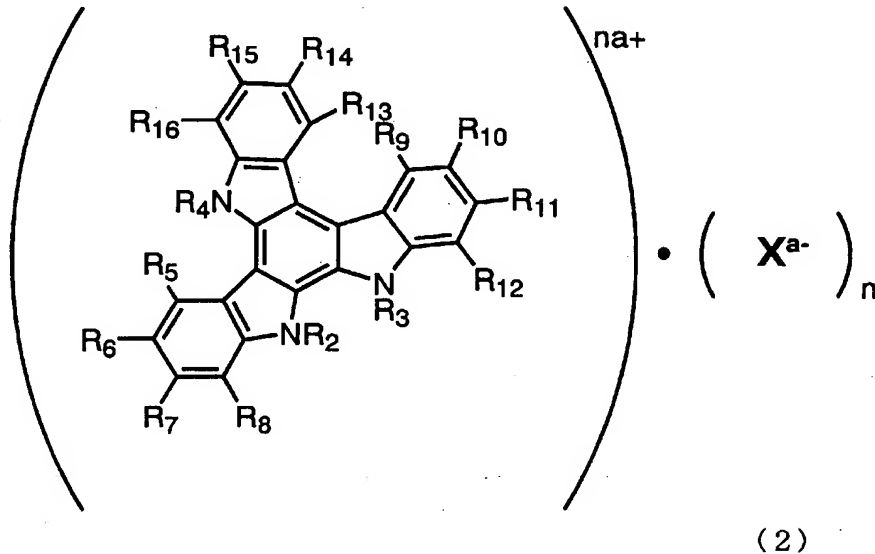
50

群から選ばれた置換基を表す。mは結合数を表し、1～12である。)で示されるインドール誘導体三量体に関する。

【0011】

前記一般式(1)中の好ましい In_3 としては、下記一般式(2)と一般式(4)が挙げられ、特に好ましい一般式(1)のインドール誘導体三量体としては、下記一般式(3)と一般式(5)が挙げられる。

【化30】



10

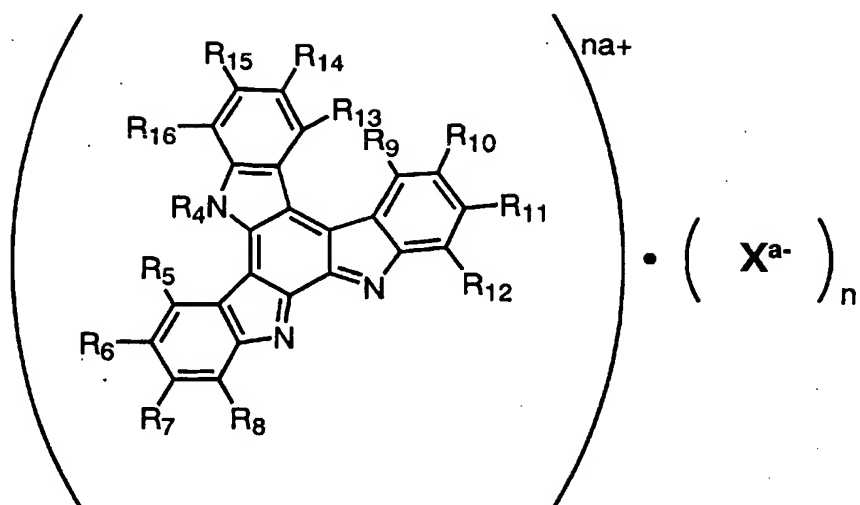
20

(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数2～30の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数2～30の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数1～30の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内のm個は置換基を持たず、 In_3 はm個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a はXのイオン価数を表し、nはドーパ率で0～3である。)

30

【0012】

【化31】

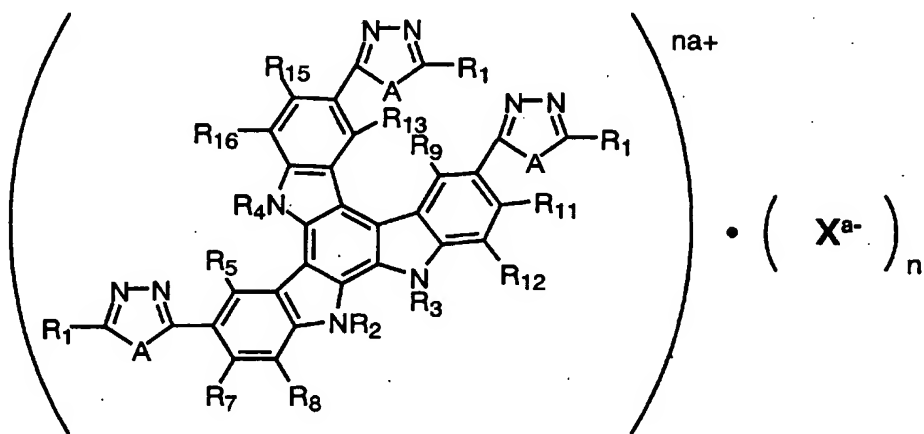


(4)

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また $R_5 \sim R_{16}$ は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。ただし、 $R_5 \sim R_{16}$ の内の m 個は置換基を持たず、 In_s は m 個の基となる。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。)

【0013】

【化32】



(3)

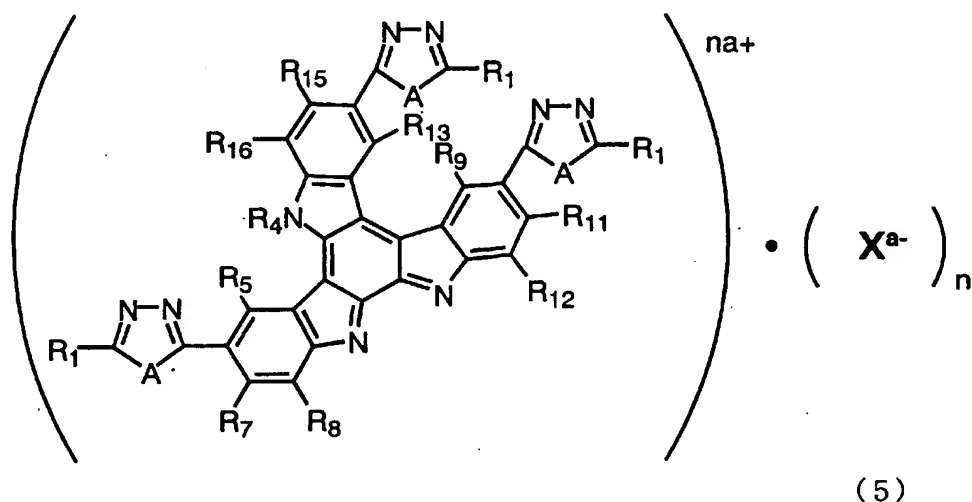
(式中、 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換

基を表す。R₂ ~ R₄ は、水素、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R₅、R₇ ~ R₉、R₁₁ ~ R₁₃、R₁₅、R₁₆ は、水素、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ~ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ~ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。A は、酸素原子あるいは硫黄原子である。また、X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、a は X のイオン価数を表し、n はドーパ率で 0 ~ 3 である。)

10

【0014】

【化33】



20

(式中、R₁ は、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1 ~ 3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。R₄ は、水素、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R₅、R₇ ~ R₉、R₁₁ ~ R₁₃、R₁₅、R₁₆ は、水素、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2 ~ 30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2 ~ 30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1 ~ 30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。A は、酸素原子あるいは硫黄原子である。また、X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、a は X のイオン価数を表し、n はドーパ率で 0 ~ 3 である。) また、前記一般式 (1) ~ (5) の R₁ は、炭素数 1 ~ 30 の芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた基であるのが好ましい。前記 R₁ は、3 級アミン含有基であっても好ましく、特に R₁ 中の 3 級アミン含有基が、芳香族炭化水素基及び/または芳香族複素環基で置換されているのが特に好ましい。また、前記 A は、酸素原子であることが好ましい。

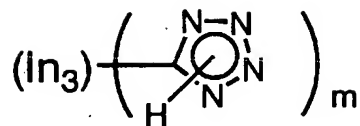
30

40

【0015】

本発明の第二は、下記一般式 (6)

【化34】

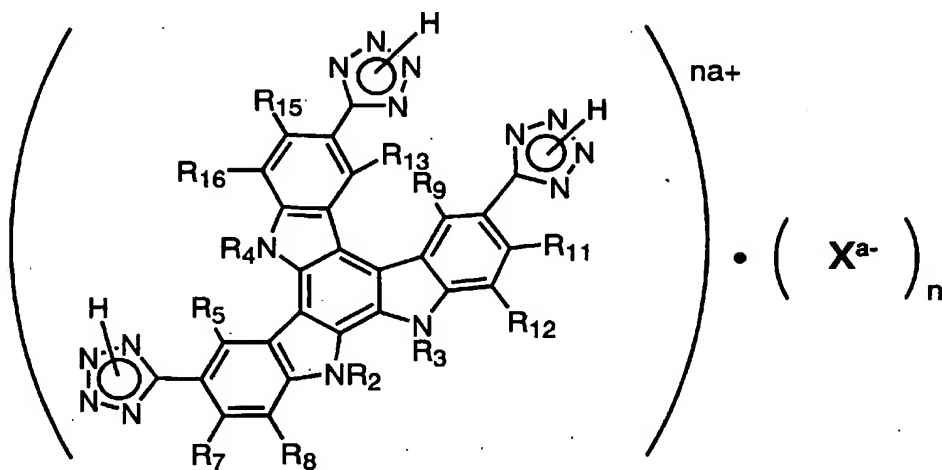


(6)

(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 個のインドール誘導体三量体基) である。また、 m は結合数を表し、1~12である。) で示されるインドール誘導体三量体に関する。前記一般式(6)中の好ましい In_3 としては、前記一般式(2)及び前記一般式(4)で示されるインドール誘導体三量体基が挙げられる。特に好ましい一般式(6)で表される化合物としては、下記一般式(7)及び下記一般式(8)で示される化合物が挙げられる。

【0016】

【化35】

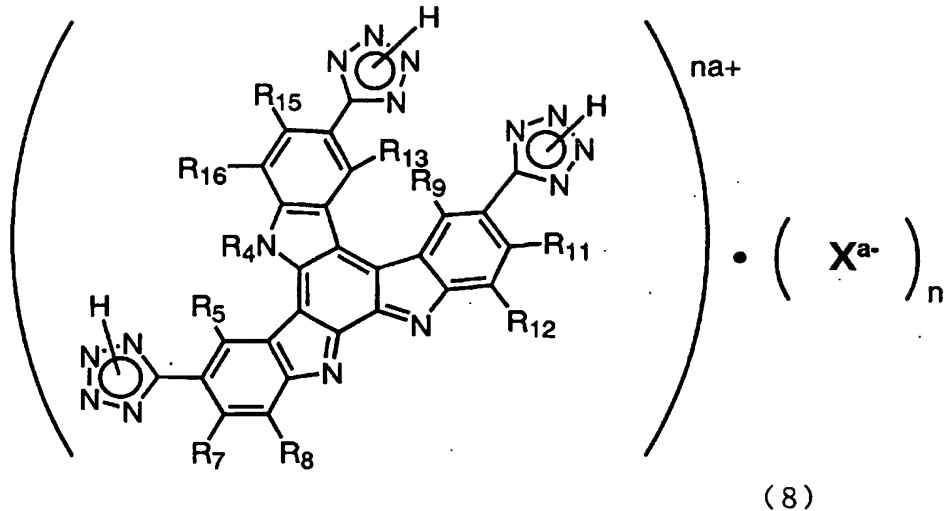


(7)

(式中、 $R_2 \sim R_4$ は、水素、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数2~30の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数2~30の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数1~30の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で0~3である。)

【0017】

【化36】



10

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。)

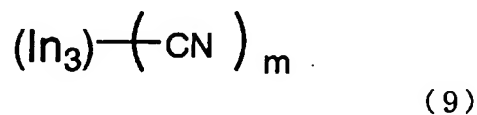
20

【0018】

本発明の第三は、下記一般式(9)

【化37】

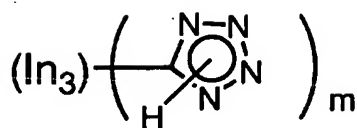
30



(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の 2 位及び 3 位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 価のインドール誘導体三量体基) である。また、 m は結合数を表し、1～12 である。) で示されるカルボニトリル化合物を、アジド化合物と反応させることによって、下記一般式(6)

40

【化38】



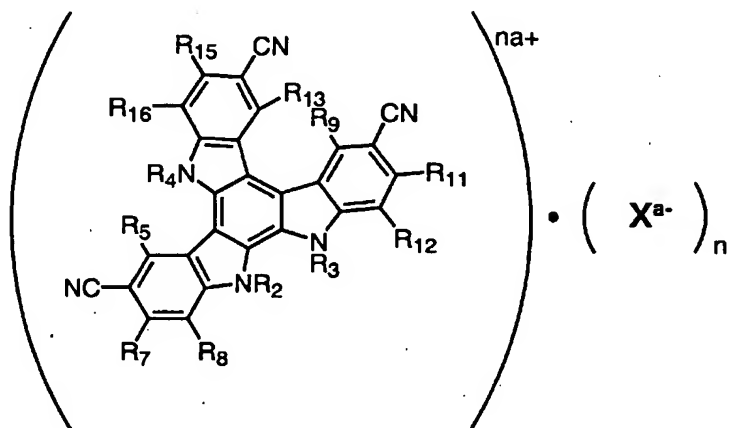
(6)

(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造(m個のインドール誘導体三量体基)である。また、mは結合数を表し、1~12である。)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法に関する。

【0019】

前記一般式(6)及び(9)中の好ましい In_3 としては、前記一般式(2)及び前記一般式(4)が挙げられる。特に好ましい一般式(9)の化合物としては、下記一般式(10)及び下記一般式(11)が挙げられ、これらを用いた時に前記一般式(7)及び前記一般式(8)で示される前記一般式(6)の特に好ましい化合物が得られる。

【化39】



(10)

(式中、 $\text{R}_2 \sim \text{R}_4$ は、水素、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また R_6 、 $\text{R}_7 \sim \text{R}_9$ 、 $\text{R}_{11} \sim \text{R}_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数2~30の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数2~30の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数1~30の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、aはXのイオン価数を表し、nはドーパ率で0~3である。)

【0020】

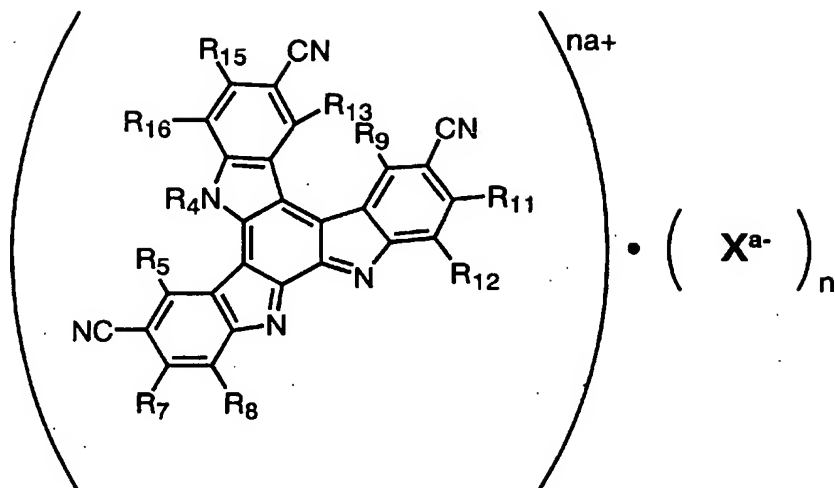
【化40】

10

20

30

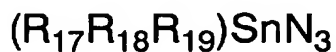
40



(11)

(式中、 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) また、前記アジド化合物としては、ナトリウムアジド、或いは、下記一般式 (12)

【化 4 1】



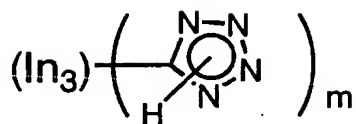
(12)

(式中、 $R_{17} \sim R_{19}$ は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、及び芳香族基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。) で示される有機スズアジド化合物が好ましく、反応に当たリアンモニウム塩あるいはアミン塩を添加することも効果的である。

【0021】

本発明の第四は、下記一般式 (6)

【化 4 2】

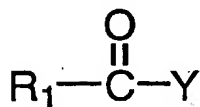


(6)

10

(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 価のインドール誘導体三量体基) である。また、 m は結合数を表し、1~12である。) で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体を、下記一般式 (13)

【化43】



(13)

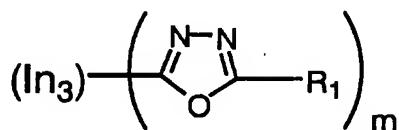
20

(式中、 R_1 は、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1~3級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 Y は、ハロゲン原子を表す。) で示される酸ハライド化合物と反応させること

30

によって、下記一般式 (14)

【化44】



(14)

40

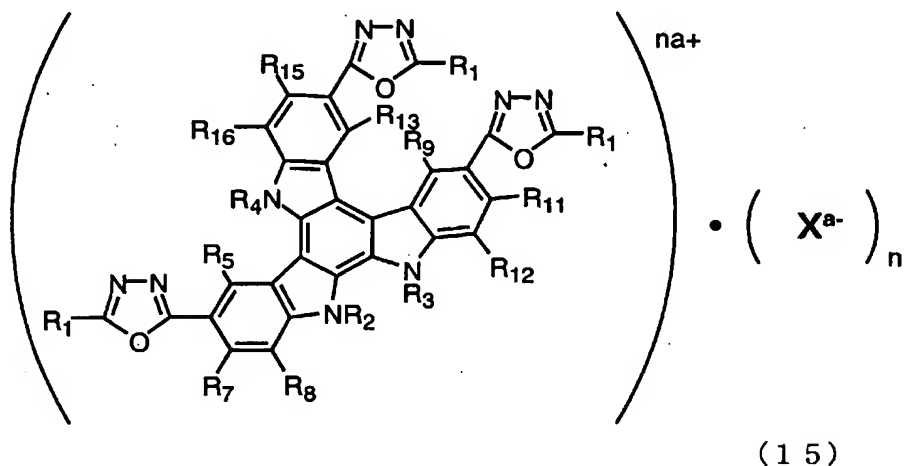
(式中、 In_3 は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3位間で結合したインドール誘導体三量体主構造 (m 価のインドール誘導体三量体基) である。 R_1 は、炭素数1~30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1~3級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 m は、結合数を表し、1~12である。) で示されるオキシジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の製造方法に関する。

【0022】

50

前記一般式(6)及び(14)中の好ましいIn₃としては、前記一般式(2)及び前記一般式(4)が挙げられる。特に好ましい前記一般式(6)の化合物としては前記一般式(7)及び前記一般式(8)が挙げられ、この時、下記一般式(15)及び下記一般式(16)で表される一般式(14)の化合物が得られる。

【化45】



10

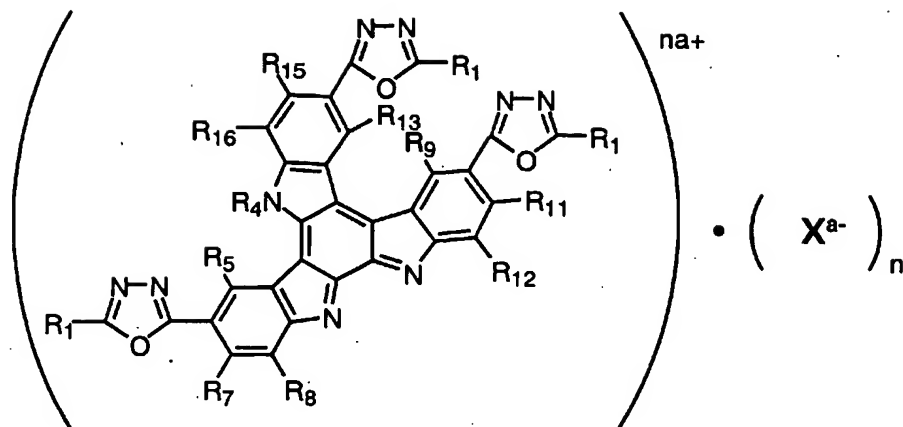
20

(式中、R₁は、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。R₂～R₄は、水素、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。またR₅、R₇～R₉、R₁₁～R₁₃、R₁₅、R₁₆は、水素、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数2～30の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数2～30の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数1～30の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立に選ばれた置換基である。また、X^{a-}は、少なくとも一種の陰イオンであり、aはXのイオン価数を表し、nはドーパ率で0～3である。)

30

【0023】

【化46】



(16)

(式中、 R_1 は、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、1～3 級アミン含有基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 R_4 は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、ベンジル基またはその誘導体よりなる群から選ばれた置換基である。また R_5 、 $R_7 \sim R_9$ 、 $R_{11} \sim R_{13}$ 、 R_{15} 、 R_{16} は、水素、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルコキシ基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のアシル基、アルデヒド基、カルボン酸基、炭素数 2～30 の直鎖または分岐のカルボン酸エステル基、スルホン酸基、炭素数 1～30 の直鎖または分岐のスルホン酸エステル基、カルボニトリル基、水酸基、ニトロ基、アミノ基及びハロゲン基よりなる群からそれぞれ独立の選ばれた置換基である。また、 X^{a-} は、少なくとも一種の陰イオンであり、 a は X のイオン価数を表し、 n はドーパ率で 0～3 である。) 20

ここで、前記 R_1 は、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基であることが好ましく、また、前記 R_1 が、3 級アミン含有基であっても好ましく、特に前記 R_1 中の 3 級アミン含有基が、芳香族炭化水素基及び/または芳香族複素環基で置換されているものが好ましい。前記 Y は、塩素原子であることが好ましい。また、塩基性化合物を添加すること効果的である。 30

【0024】

本発明の第五は、上記本発明の第一または第二に記載した少なくとも一つのインドール誘導体三量体を含有する液晶組成物に関し、また本発明の第六は、対向する陽極と陰極の間に有機層を有する発光素子において、該有機層の少なくとも一つが上記本発明の第一または第二に記載した少なくとも一つのインドール誘導体三量体を含有することを特徴とする発光素子に関する。対向する陽極と陰極の間に有機層を有する発光素子において、発光材料として三重項励起状態からの発光が可能な発光材料が含まれていることが好ましい。 40

【0025】

【発明の実施の形態】

以下、本発明のインドール三量体骨格を有する新規化合物とその製造方法について詳細に説明する。

【0026】

本発明の前記一般式(1)等において、 R_1 における炭素数 1～30 の直鎖または分岐のアルキル基の具体例としては、メチル基、エチル基、iソープロピル基、tertセブチル基、n-オクチル基、n-デシル基、n-ヘキサデシル基、シクロプロピル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などが挙げられる。 50

【0027】

本発明の前記一般式(1)等において、 R_1 における芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基の具体例としては、スチリル基、フェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、ナフチル基、アントリル基、アセナフテニル基、フルオレニル基、フェナントリル基、インデニル基、ビレニル基、ビリジル基、ビリミジル基、フラニル基、ピロニル基、チオフェニル基、キノリル基、ベンゾフラニル基、ベンゾチオフェニル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾオキサゾリル基、キノキサリル基、ベンゾイミダゾリル基、ピラゾリル基、ジベンゾフラニル基、ジベンゾチオフェニル基、オキサゾリル基、オキサジアゾリル基などが挙げられる。

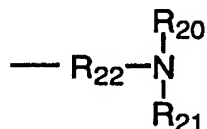
【0028】

これらの芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基は、更に一つ以上のハロゲン原子、水酸基、カルボニトリル基、ニトロ基、アミノ基、トリフルオロメチル基、炭素数1から30のアルキル基、炭素数1から30のアルコキシ基、アリールオキシ基、フェニル基、スチリル基、ナフチル基、チオフェニル基、アラルキル基、ビフェニル基、ビチオフェニル基、フラニル基、ビフラニル基、ピロニル基、ビピロニル基、などの置換基を有していてもよい。

【0029】

本発明の前記一般式(1)等において、 R_1 における1～3級アミン含有基とは、 R_1 が、下記一般式(17)

【化47】



(17)

(式中、 R_{20} または R_{21} は、炭素数1～30の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基及び、これらの誘導体よりなる群から選ばれた置換基を表す。 R_{22} は、2価の連結基もしくは単なる結合である。)で示される化合物である。好ましくは、 R_{20} または R_{21} が、芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基で、 R_{22} が、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基、あるいは単なる結合であり、より好ましくは、 $R_{20} \sim R_{22}$ が、芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基である。 $R_{20} \sim R_{21}$ は、同一でも異なっても構わない。

【0030】

前記一般式中の R_1 は、芳香族炭化水素基、芳香族複素環基または、1～3級アミン含有基であることが好ましい。

【0031】

本発明の前記一般式(1)等において、Aは酸素原子または硫黄原子であり、好ましくは酸素原子である。

【0032】

本発明の前記一般式(1)等において、mは、インドール誘導体三量体との結合数を表す。一般式(1)等中の $I n_3$ が一般式(2)または(4)で表せる場合、その結合位置は、 $R_5 \sim R_{16}$ の少なくとも一つ以上である。取り得るmは、無置換のインドール三量体においては、1～12であり、三置換のインドール三量体においては、1～9である。

【0033】

本発明の一般式(1)等中の $I n_3$ は、インドールまたはインドール誘導体の2位及び3

位間で結合したインドール誘導体三量体主構造であり、m価のインドール誘導体三量体基である。2位及び3位間での結合形態は、直鎖状あるいは環状のいずれも許容し、また結合の順序についても特に限定されるものではない。そのなかでも、一般式(2)または(4)で示される、3つのインドールまたはインドール誘導体が環状に三量化したものが好ましい。具体的には、インドール三量体、4-メチルインドール三量体、5-メチルインドール三量体、6-メチルインドール三量体、7-メチルインドール三量体、4-エチルインドール三量体、5-エチルインドール三量体、6-エチルインドール三量体、7-エチルインドール三量体、4-n-プロピルインドール三量体、5-n-プロピルインドール三量体、6-n-プロピルインドール三量体、7-n-プロピルインドール三量体三量体、4-iソ-プロピルインドール三量体三量体、5-iソ-プロピルインドール三量体三量体、6-iソ-プロピルインドール三量体三量体、7-iソ-プロピルインドール三量体三量体、4-n-ブチルインドール三量体、5-n-ブチルインドール三量体、6-n-ブチルインドール三量体、7-n-ブチルインドール三量体、4-sec-ブチルインドール三量体、5-sec-ブチルインドール三量体、6-sec-ブチルインドール三量体、7-sec-ブチルインドール三量体、4-tert-ブチルインドール三量体、5-tert-ブチルインドール三量体、6-tert-ブチルインドール三量体、7-tert-ブチルインドール三量体などのアルキル基置換インドール三量体類、4-メトキシインドール三量体、5-メトキシインドール三量体、6-メトキシインドール三量体、7-メトキシインドール三量体、4-エトキシインドール三量体、5-エトキシインドール三量体、6-エトキシインドール三量体、7-エトキシインドール三量体、4-n-プロポキシインドール三量体、5-n-プロポキシインドール三量体、6-n-プロポキシインドール三量体、7-n-プロポキシインドール三量体、4-iソ-プロポキシインドール三量体、5-iソ-プロポキシインドール三量体、6-iソ-プロポキシインドール三量体、7-iソ-プロポキシインドール三量体、4-n-ブトキシインドール三量体、5-n-ブトキシインドール三量体、6-n-ブトキシインドール三量体、7-n-ブトキシインドール三量体、4-sec-ブトキシインドール三量体、5-sec-ブトキシインドール三量体、6-sec-ブトキシインドール三量体、7-sec-ブトキシインドール三量体、4-tert-ブトキシインドール三量体、5-tert-ブトキシインドール三量体、6-tert-ブトキシインドール三量体、7-tert-ブトキシインドール三量体などのアルコキシ基置換インドール三量体類、4-アセチルインドール三量体、5-アセチルインドール三量体、6-アセチルインドール三量体、7-アセチルインドール三量体などのアシル基置換インドール三量体類、インドール-4-カルバルデヒド三量体、インドール-5-カルバルデヒド三量体、インドール-6-カルバルデヒド三量体、インドール-7-カルバルデヒド三量体などのアルデヒド基置換インドール三量体類、インドール-4-カルボン酸三量体、インドール-5-カルボン酸三量体、インドール-6-カルボン酸三量体、インドール-7-カルボン酸三量体などのカルボン酸基置換インドール三量体類、インドール-4-カルボン酸メチル三量体、インドール-5-カルボン酸メチル三量体、インドール-6-カルボン酸メチル三量体、インドール-7-カルボン酸メチル三量体などのカルボン酸エステル基置換インドール三量体類、インドール-4-スルホン酸三量体、インドール-5-スルホン酸三量体、インドール-6-スルホン酸三量体、インドール-7-スルホン酸三量体などのスルホン酸基置換インドール三量体類、インドール-4-スルホン酸メチル三量体、インドール-5-スルホン酸メチル三量体、インドール-6-スルホン酸メチル三量体、インドール-7-スルホン酸メチル三量体などのスルホン酸エステル基置換インドール三量体類、インドール-4-カルボニトリル三量体、インドール-5-カルボニトリル三量体、インドール-6-カルボニトリル三量体、インドール-7-カルボニトリル三量体などのカルボニトリル基置換インドール三量体類、4-ヒドロキシインドール三量体、5-ヒドロキシインドール三量体、6-ヒドロキシインドール三量体、7-ヒドロキシインドール三量体などのヒドロキシ基置換インドール三量体類、4-ニトロインドール三量体、5-ニトロインドール三量体、6-ニトロインドール三量体、7-ニトロインドール三量体などのニトロ基置換インドール三量体類、4-アミノインドール三量体、5-アミノインド

ール三量体、6-アミノインドール三量体、7-アミノインドール三量体などのアミノ基置換インドール三量体類、4-フルオロインドール三量体、5-フルオロインドール三量体、6-フルオロインドール三量体、7-フルオロインドール三量体、4-クロロインドール三量体、5-クロロインドール三量体、6-クロロインドール三量体、7-クロロインドール三量体、4-ブロモインドール三量体、5-ブロモインドール三量体、6-ブロモインドール三量体、7-ブロモインドール三量体、4-ヨードインドール三量体、5-ヨードインドール三量体、6-ヨードインドール三量体、7-ヨードインドール三量体などのハロゲン基置換インドール三量体類などの主構造を挙げることができる。更に、これらのインドール誘導体三量体の主構造に有するインドール骨格内の窒素原子がN-アルキル化、N-ベンジル化またはその誘導体化された各種インドール三量体類などの主構造も挙げることができる。このN-アルキル化、N-ベンジル化またはその誘導体化されたインドール誘導体三量体の主構造は、化学的安定性が良好で実用上好ましい。

10

【0034】

前記インドール誘導体三量体の主構造を持つ化合物は、インドール誘導体の化学的反応、あるいは電気的反応によって合成例が報告されている。一例として、化学的反応はW O O 2 / 3 2 9 0 3 公報に、電気的反応はJ. Chem. Soc., Faraday Trans. 2, 90 (8), (1994) 1121頁に記載されている。

【0035】

前記インドール誘導体三量体中の $X^{\alpha-}$ はドーパントであり、フロトン酸の陰イオンである。具体的には、無機酸イオンとしては、塩素イオン、臭素イオン、ヨウ素イオン、フッ素イオン等のハロゲンイオン、硝酸イオン、亜硝酸イオン等の窒素酸素酸イオン、硫酸イオン、亜硫酸イオン、過硫酸イオン等の硫黄酸素酸イオンの他、硫酸水素イオン、リン酸イオン、テトラフルオロホウ酸イオン、ヘキサフルオロリン酸イオン、過塩素酸イオン、チオシアン酸イオン等が挙げられる。また、有機酸イオンとしては、酢酸イオン、プロピオン酸イオン、トリフルオロ酢酸イオン等のアルキルあるいはアリールカルボン酸イオン、メタンスルホン酸イオン、トリフルオロメタンスルホン酸イオン、P-トルエンスルホン酸イオン等のアルキルあるいはアリールスルホン酸イオン等が挙げられる。さらに高分子酸イオンとしては、ポリビニルスルホン酸、ポリスチレンスルホン酸、ポリ(2-アクリルアミド-2-メチルプロパン)スルホン酸、ポリビニルスルホン酸、ポリ(2-メトキシアニリン-5-スルホン酸)等のスルホン酸基及び/またはカルボキシル基を有する導電性ポリマーなどの高分子酸イオンである。

20

30

【0036】

また、前記インドール誘導体三量体は、従来から各種導電性ポリマー、電荷移動錯体の脱ドーパ工程として公知の方法、すなわち、アンモニア水、水酸化ナトリウム、水酸化リチウムなどのアルカリ性溶液中に導電性ポリマー、電荷移動錯体をケン濁させてドーパント $X^{\alpha-}$ を除去する方法、により脱ドーパ型のインドール誘導体三量体(すなわち、ドーパ率 $n=0$)を容易に生成することができる。脱ドーパ型のインドール誘導体三量体は、再度任意種類、任意の量のドーパ剤による処理により任意のドーパントを任意のドーパ率だけ有するドーパ型のインドール誘導体三量体に容易に変換することができる。例えば、塩素イオン以外の対イオンを有する酸化剤で重合したドーパ型インドール誘導体三量体を、水酸化ナトリウム溶液で脱ドーパして脱ドーパ型のインドール誘導体三量体とした後、それを塩酸水溶液に再ケン濁させることで、塩素ドーパ型インドール誘導体三量体へと誘導することも可能である。

40

【0037】

前記インドール誘導体三量体における、ドーパ率 n は、0~3であるが、化学的安定性の観点から、好ましくは0~1、より好ましくは0~0である。

【0038】

本発明の一般式(1)は、一般式(3)または(5)で示される化合物が特に好ましい。一般式(3)または(5)中の $R_1 \sim R_{10}$ 、及びAは、一般式(1)と同義である。

【0039】

50

本発明の前記一般式(6)は、前記一般式(1)を合成するにあたり、重要な合成中間体である。一般式(6)中の $1n_3$ 、 m は、一般式(1)中の $1n_3$ 、 m と同義である。本発明の一般式(6)は、一般式(7)または(8)で示される化合物が特に好ましい。

【0040】

前記一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体は、前記一般式(9)で示されるカルボニトリル化合物を、アジド化合物と反応させることによって合成することができる。アジド化合物は特に限定されないが、無機アジド化合物であるアルカリ金属またはアルカリ土類金属のアジド化合物、または前記一般式(12)で示される有機スズアジド化合物であることが好ましい。一般式(12)中の $R_{17} \sim R_{19}$ は、炭素数1~30、好ましくは炭素数1~10の直鎖または分岐のアルキル基、芳香族炭化水素基または芳香族複素環基で、同じでも異なっても構わない。具体的には、無機アジド化合物としては、ナトリウムアジド、リチウムアジド、ポタシウムアジド、ルビジウムアジド、セシウムアジドなどが、有機スズアジド化合物としては、トリメチルチンアジド、トリエチルチンアジド、トリブチルチンアジドなどのトリアルキルスズアジド化合物やトリフェニルチンアジド、トリビフェニルチンアジドなどのトリフェニルスズアジド化合物などが挙げられる。また、これらのアジド化合物を2種以上併用してもよい。アジド化合物の使用量は、一般式(9)で示されるカルボニトリル化合物1モルに対し、アジド化合物換算で通常1~5モルの範囲、好ましくは1~3モルの範囲である。さらに、アンモニウム塩またはアミン塩と等モル量を使用するのが好ましい。

【0041】

一般式(9)で示されるカルボニトリル化合物とアジド化合物による、一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の合成は、一般的には溶媒中で行われる。溶媒は、反応に関与しないものであれば特に限定されないが、ベンゼン、トルエン、ヘキサン等の炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、ニトロベンゼン、ニトロメタン等のニトロ化炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ジメチルホルムアミド等のアミド類、またはメタノール、エタノール等のアルコール類及びそれらの混合物が用いられる。好ましくは、溶媒の沸点が80℃以上の比較的高沸点の有機溶媒である。溶媒量は特に限定されないが、好ましくは反応基質の3~20倍質量である。

【0042】

一般式(9)で示されるカルボニトリル化合物とアジド化合物による、一般式(6)で表されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の合成において、反応温度は、通常-50℃~200℃であり、好ましくは0℃~150℃である。

【0043】

一般式(9)で示されるカルボニトリル化合物とアジド化合物による、一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の合成において、アンモニウム塩またはアミン塩の存在下で反応を行うことで、反応の進行が容易となる。アミン塩は、アミンとしては、第1級、第2級、第3級アミンのいずれでもよく、特に限定されないが、脂肪族アミンがより好ましい。具体的には、メチルアミン塩、エチルアミン塩、プロピルアミン塩、ブチルアミン塩、アミルアミン塩、ヘキシルアミン塩、シクロヘキシルアミン塩、ヘプチルアミン塩、オクチルアミン塩、アリルアミン塩、ベンジルアミン塩、 α -フェニルエチルアミン塩、 β -フェニルエチルアミン塩などの第1級アミン塩、ジメチルアミン塩、ジエチルアミン塩、ジプロピルアミン塩、ジブチルアミン塩、ジアミルアミン塩、ジヘキシルアミン塩、ジシクロヘキシルアミン塩、ジアリルアミン塩、モルホリン塩、ピペリジン塩、ヘキサメチレンジアミン塩などの第2級アミン塩、トリメチルアミン塩、トリエチルアミン塩、トリプロピルアミン塩、トリブチルアミン塩、トリアミルアミン塩、トリヘキシルアミン塩、トリアリルアミン塩、ピリジン塩、トリエタノールアミン塩、N-メチルモルホリン塩、N,N-ジメチルシクロヘキシルアミン塩、N,N-ジメチルアニリン塩、N,N,N',N'-テトラメチルエチレンジアミン塩、4-ジメチルアミノピリジン塩などの第3級アミン塩などが挙げられる。また、これらのアミン塩を2種以

上併用してもよい。

【0044】

アンモニウム塩またはアミン塩を形成する酸としては、基本的にアンモニウムまたはアミンと塩を生成する酸であれば特に限定されない。酸としては、具体的には、塩酸、臭化水素、硫酸、硝酸、リン酸、ホウ酸、アジ化水素、塩素酸、炭酸、硫化水素等の無機酸；蟻酸、酢酸、トリフロロ酢酸、アロビオン酸、シュウ酸、メタンスルホン酸、ベンゼンスルホン酸、トルエンスルホン酸等の有機酸などが挙げられる。好ましい酸は、塩酸、臭化水素、硫酸、アジ化水素、酢酸、トリフロロ酢酸等である。

【0045】

特に好ましいアンモニウム塩としては塩化アンモニウムが挙げられ、特に好ましいアミン塩としてはトリエチルアミン塩酸塩が挙げられる。

10

【0046】

アンモニウム塩またはアミン塩は、予め合成したものを使用してもよいし、または反応系内でアンモニウムまたはアミンと、酸を反応させて塩を合成して使用してもよい。

【0047】

アンモニウム塩またはアミン塩の使用量は、反応が進行するのに必要な最低限度量でよいが、一般式(9)で表されるカルボニトリル化合物1モルに対し、アミン換算で通常1～5モルの範囲、好ましくは1～3モルの範囲である。さらに、アジド化合物と等モル量を使用するのが好ましい。

【0048】

一般式(9)で示されるカルボニトリル化合物とアジド化合物による、一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体の合成において、 Ln_3 の構造による4つの合成ルートがある。具体的には、一般式(9)中の Ln_3 の構造が一般式(2)のとき、合成される一般式(6)中の Ln_3 の構造は、一般式(2)及び／または一般式(4)を取り得る。また同様に、一般式(9)中の Ln_3 の構造が一般式(4)のとき、合成される一般式(6)中の Ln_3 の構造は、一般式(2)及び／または一般式(4)を取り得る。これらの Ln_3 の構造は、反応条件、反応後の後処理方法、化合物の安定性などの様々な条件によって決定する。一般的には、 Ln_3 は、酸性条件では一般式(2)の構造を、アルカリ条件～中性条件では一般式(4)の構造をとる傾向にある。

20

【0049】

前記一般式(14)で示されるオキシジアゾール基を有するインドール誘導体三量体は、前記一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体を、前記一般式(13)で示される酸ハライド化合物と反応させることによって合成することができ、一般式(14)中の Ln_3 、 R_1 及び m は、一般式(6)中の Ln_3 、 R_1 及び m と同義である。本発明の一般式(14)は、一般式(15)または(16)で示される化合物が特に好ましい。

30

【0050】

一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体と、一般式(13)で示される酸ハライド化合物による、一般式(14)で示されるオキシジアゾール基を有するインドール誘導体三量体合成において、酸ハライド化合物である一般式(13)中の R_1 は、前記一般式(1)中の R_1 と同義であり。そのなかでも、芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基、1～3級アミン含有基であることが好ましい。また、一般式(13)中の Y は、ハロゲン原子を示す。具体的には、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。そのなかでも、塩素原子、臭素原子が好ましく、塩素原子がより好ましい。酸ハライド化合物の使用量は、一般式(6)で表されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体1モルに対し、酸ハライド化合物換算で通常1～50モルの範囲、好ましくは1～20モルの範囲である。

40

【0051】

一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体と一般式(13)で示される酸ハライド化合物による、一般式(14)で示されるオキシジアゾール基を

50

有するインドール誘導体三量体の合成において、塩基性化合物を添加すること、反応が効率よく進行する。塩基性化合物とは、具体的には、ピリジン、及びその誘導体、トリエチルアミン、トリブチルアミン、トリエタノールアミン、キノリン、ピペラジン、モルホリンなどの有機塩基性化合物や、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基性化合物が挙げられるが、好ましくは有機塩基性化合物である。

【0052】

一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体と一般式(13)で示される酸ハライド化合物による、一般式(14)で示されるオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の合成は、一般的には溶媒中で行われる。溶媒は、反応に関与しないものであれば特に限定されないが、ベンゼン、トルエン、ヘキサン等の炭化水素類、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、ニトロベンゼン、ニトロメタン等のニトロ化炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類、ジメチルホルムアミド等のアミド類、またはメタノール、エタノール等のアルコール類及びこれらの混合物が用いられる。また、前記塩基性化合物を過剰に用いて、溶媒としても良い。好ましくは、溶媒の沸点が80℃以上の比較的高沸点の有機溶媒である。溶媒量は特に限定されないが、好ましくは反応基質の3～20倍質量である。

10

【0053】

一般式(6)で示されるテトラゾール基を有するインドール誘導体三量体と一般式(13)で示される酸ハライド化合物による、一般式(14)で示されるオキサジアゾール基を有するインドール誘導体三量体の合成において、反応温度は、通常-50℃～200℃であり、好ましくは0℃～150℃である。

20

【0054】

本発明の発光素子の構造について以下に述べる。素子の構造は公知の構造をとることができる。一般的には、対向する陽極、陰極との間に、有機発光層、あるいは有機発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子である。例えば、基盤/陽極/有機発光層/陰極(ノは層を積層したことを示す)、基盤/陽極/正孔輸送層/有機発光層/陰極、基盤/陽極/電荷輸送材料と発光材料との混合層/陰極、あるいは基盤/陽極/正孔輸送層/電荷輸送材料と発光材料との混合層/陰極の構造等をとることができる。また、基板/陽極と正孔輸送材料との間に導電性高分子層を有する組み合わせの構造をとることもできるし、有機発光層と陰極との間に電子輸送層を有する組み合わせの構造をとることもできる。更に、基盤/陽極/導電性高分子層/正孔輸送層/有機発光層/電子輸送層/陰極の構造をとることもできる。その他、正孔注入層、電子注入層、保護層などを有していてもかまわない。

30

【0055】

本発明の発光素子に用いられる基板は、石英やガラスの板、金属や金属箔、プラスチックフィルムやシートなどが用いられる。特に、ガラス板や、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂の板が好ましい。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留意する必要がある。基板のガスバリア性が小さすぎると、基板を通過した外気により発光素子を劣化することがあるので好ましくない。このため、合成樹脂基板の上に密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を付与する方法も好ましい方法の一つである。

40

【0056】

本発明の発光素子に用いられる電極について述べる。陽極は、基板上に設けられた正孔注入層、正孔輸送層、有機発光層などへ正孔を供給する役割を果たすものである。金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができる。具体的には、アルミニウム、金、銀、ニッケル、クロム、パラジウム、白金等の金属、インジウム、スズ、インジウムスズ、亜鉛の酸化物などの導電性金属酸化物、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物または積層物、ヨウ化銅、硫化銅などの無機導電性物質、カーボンブラック、あるいは、ポリ(3-メチルチオフェン)、ポリピロール、ポ

50

リアニリン等の有機導電性材料、及びこれらと酸化インジウムスズとの積層物などが挙げられる。好ましくは、仕事関数が 4 eV 以上の材料であり、そのなかでも有機導電性材料導電性金属酸化物がより好ましく、最も好ましいのは、酸化インジウムスズである。陽極の形成は、スパッタリング法、真空蒸着法などにより行われることが多い。また、銀などの金属微粒子、ヨウ化銅などの微粒子、カーボンブラック、導電性金属酸化物の微粒子、有機導電性材料の微粉末などの場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板上に塗布することにより陽極を形成することもできる。さらに、有機導電性材料の場合は電解重合により直接基板上に薄膜を形成したり、基板上に有機導電性材料を塗布して陽極を形成することもできる(A P P I. P h n S. L e t t e r. 60巻, 2711頁, 1992年)。陽極は異なる物質を積層して形成することも可能である。陽極の厚みは、必要とする透明性により異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過率を、通常、60%以上、好ましくは80%以上とすることが望ましく、この場合、厚みは、通常、5~1000nm、好ましくは10~500nm程度である。不透明でよい場合は陽極は基板と同一でもよい。また、さらに上記の陽極の上に異なる導電材料を積層することも可能である。

10

【0057】

一方、陰極は、電子注入層、電子輸送層、有機発光層などへ電子を供給する役割を果たすものである。陰極として用いられる材料は、前記陽極に使用される材料を用いることが可能であるが、効率よく電子注入を行うには、仕事関数が 4 eV 以下の材料が好ましい。具体的には、アルカリ金属及びそのフッ化物、酸化物、アルカリ土類金属及びそのフッ化物、酸化物、金、銀、アルミニウム、鉛、スズ、ナトリウム-カリウム合金または、これらの金属混合物、リチウム-アルミニウム合金または、これらの金属混合物、マグネシウム-銀合金または、これらの金属混合物、希土類金属類などが挙げられる。好ましくは、スズ、アルミニウム、リチウム-アルミニウム合金または、これらの金属混合物、マグネシウム-銀合金または、これらの金属混合物などである。陰極の厚みは、前記陽極と同様である。さらに、低仕事関数金属から成る陰極を保護する目的で、この上に仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層することで素子の安定性を増す。この目的のために、アルミニウム、銀、ニッケル、クロム、金、白金等の金属が用いられる。また、これら陽極及び陰極のシート抵抗は、低いほうが好ましく、 $500\Omega/\square$ 以下が好ましい。

20

【0058】

本発明で用いられる有機発光層の材料は、陽極、正孔注入層、または正孔輸送層から正孔が注入することができると同時に、陰極、電子注入層、または電子輸送層から電子が注入することができ、またこれらの両電荷が輸送され、正孔と電子が再結合することで、発光する機能を有する層を形成する材料であれば特に限定されない。具体的には、低分子化合物としてはテトラフェニルアタジエン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ペリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペンゾオキサジアゾール誘導体、ペンゾイミダゾール誘導体、ペンゾチアゾール誘導体、ビススチリルベンゼン誘導体、ナフタルイミド誘導体、ペリレン誘導体、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、キナクリドン誘導体、ジスチリルビラジン誘導体、P-フェニレン化合物、チアジアゾロピリジン誘導体、ピロロピリジン誘導体、ナフチリジン誘導体、ビススチリルアントラセン誘導体、スチリルアミン誘導体、シロール誘導体、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体、10-ヒドロキシペンソ[ん]キノリンの金属錯体、混合配位子アルミニウムキレート錯体、オルトメタル化錯体、希土類錯体などが挙げられる。また、高分子化合物としては、ポリ(P-フェニレンビニレン)、ポリフェニレン、ポリチオフェンと、その誘導体などが挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて各々混合して用いてもよい。発光層の厚さは、特に限定されないが、1~5000nm、好ましくは5~1000nm、より好ましくは10~500nmである。発光層の形成方法は、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法、カーテンフローコート法、リバースコート法、キスコート法、ファンテンコート法、ロッドコート法、エアドクターコート法、ナイフコート法、ブレードコート法、スクリーンコート法

30

40

50

、スプレーコート法、インクジェット法、ディップコーティング法、LB法、真空蒸着法、スパッタリング法などが挙げられる。そのなかでも、真空蒸着法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、インクジェット法が好ましい。

【0059】

本発明で用いられる正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入すること、あるいは輸送すること、陰極から注入された電子を障壁することのいずれかが機能すれば特に限定されない。具体的には、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及びその誘導体、チオフェンオリゴマー及びその誘導体、ポリ(P-フェニレンビニレン)及びその誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリアルアミン誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、芳香族置換第三級アミン化合物誘導体、スチリルアミン誘導体、ポリシラン誘導体等が挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。正孔注入層、正孔輸送層の厚さは、特に限定されるものではないが、好ましくは1~5000nm、より好ましくは5~1000nm、特に好ましくは10~500nmである。正孔注入層、正孔輸送層の形成方法は、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法、カーテンフローコート法、リバースコート法、キスコート法、ファンテンコート法、ロッドコート法、エアドクターコート法、ナイフコート法、ブレードコート法、スクリーンコート法、スプレーコート法、インクジェット法、ディップコーティング法、LB法、真空蒸着法、スパッタリング法などが挙げられる。そのなかでも、真空蒸着法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、インクジェット法が好ましい。また、コーティング法、キャストリング法、ディップコーティング法等の場合、樹脂成分と共に溶解または分散させて成膜することができる。樹脂成分の具体例としては、ポリビニルアルコール、ポリビニルホルマール、ポリビニルブチラールなどのポリビニルアルコール類、ポリアクリルアミド、ポリ(N-セーブチルアクリルアミド)、ポリアクリルアミドメチルフロパンスルホン酸などのポリアクリルアミド類、ポリビニルピロリドン類、シリコン樹脂、アルキド樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリブタジエン樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、ビニルエステル樹脂、ユリア樹脂、ポリイミド樹脂、マレイン酸樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、酢酸ビニル樹脂、塩素化ポリエチレン樹脂、塩素化ポリプロピレン樹脂、アクリルノスチレン共重合樹脂、酢酸ビニルノアクリル共重合樹脂、ポリエステル樹脂、スチレンノマレイン酸共重合樹脂、ポリテトラフルオロエチレン樹脂をはじめとするフッ素系樹脂及びこれらの共重合体などが用いられる。またこれらの樹脂成分は2種以上を任意の割合で混合したものであってもよい。

【0060】

本発明で用いられる電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入すること、あるいは輸送すること、陽極から注入された正孔を障壁することのいずれかが機能すれば特に限定されない。具体的には、テトラフェニルブタジエンなどの芳香族化合物誘導体、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの金属錯体、シクロペンタジエン誘導体、ヘリノン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ビススチリルベンゼン誘導体、ヘリレン誘導体、クマリン化合物、希土類錯体、ジスチリルピラジン誘導体、P-フェニレン化合物誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、ピロロピリジン誘導体、ナフチリジン誘導体などが挙げられる。これらの化合物は、単独で用いてもよいし、必要に応じて、各々、混合して用いてもよい。電子注入層、電子輸送層の厚さは、特に限定されるものではないが、1~5000nm、好ましくは5~1000nm、より好ましくは10~500nmである。電子注入層、電子輸送層の形成方法は、前記正孔注入層、正孔輸送層の形成方法と同様である。また、コーティング法、キャストリング法、ディップコーティング法等の場合、樹脂成分と共に溶解または分散させて成膜することができることも、前記正孔注入層、正孔輸送層の場合と同様である。

【0061】

本発明の発光素子に用いる保護層は、水分は酸素などが素子内に進入して、素子劣化を引き起こすことを抑制できれば特に限定されない。具体的には、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリウレタ樹脂、ポリテトラフルオロエチレン樹脂をはじめとするフッ素系樹脂、及び、金、銀、銅、アルミニウム、チタン、ニッケル、インジウム、スズ、鉛などの金属、マグネシウム、カルシウム、バリウム、イットリウム、チタン、鉄、ニッケル、アルミニウム、シリコン、ゲルマニウムなどの金属酸化物、リチウム、ナトリウム、マグネシウム、カルシウム、アルミニウムなどの金属フッ化物等が挙げられる。保護層の形成方法は、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法、カーテンフローコート法、リバースコート法、キスコート法、ファンテンコート法、ロッドコート法、エアドクターコート法、ナイフコート法、ブレードコート法、スクリーンコート法、スプレーコート法、インクジェット法、ディップコーティング法、LB法、真空蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、各種CVD法などが挙げられる。そのなかでも、真空蒸着法、スピンコーティング法、キャスト法、バーコート法、インクジェット法、各種CVD法が好ましい。

10

【0062】

【実施例】

以下、本発明を実施例を挙げてさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例にのみ限定されるものではない。

20

【0063】

なお、本実施例において、NMR測定は、JEOL製Lambda-300で、IRスペクトルは、JASCO製FT-IR-610の装置をKBr法でそれぞれ測定した。また、示差走査熱量測定(DSC)は、SEIKO I&E製 SSC-5200、DSC220C(走引速度:3℃/分)で測定した。相転位観察は、オリンパス製偏光顕微鏡Model BH-2を用いた。

【0064】

(実施例1)

300mlの三口フラスコにジメチルホルムアミド150mlを入れ、インドール-5-カルボニトリル三量体0.50gを溶解した。その溶液に、ナトリウムアジド3.8g、塩化アンモニウム2.6gを加えて、24時間還流した。反応終了後、室温まで冷却して未反応のナトリウムアジド、塩化アンモニウムをろ別した。ジメチルホルムアミドを減圧留去し、クロロホルムに溶媒置換後、水、ブライン洗浄を実施した。クロロホルム層を乾燥後、濃縮し、未精製のインドール-5-テトラゾール三量体を得た。続いて、n-ヘキサン/酢酸エチル=1/30(v/v)を溶離液として、カラムクロマトグラフィーで分離精製を行った。深緑色の6,11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2,3- α :2',3'-c]カルバゾール-2,9,14-トリテトラゾール、(インドール-5-テトラゾール三量体)0.24g(収率35%)を得た。

30

【0065】

(実施例2)

200mlの三口フラスコにピリジン50mlを入れ、インドール-5-テトラゾール三量体0.15gを溶解した。その溶液に、4-n-ヘキシルベンゾイルクロライド1.03gを加えて、100時間還流した。反応終了後、反応液を氷浴にあげて、沈殿物をろ取した。氷冷下、クロロホルムにて抽出後、水、ブライン洗浄を実施した。クロロホルム層を乾燥後、濃縮し、未精製の5-[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]インドール三量体を得た。続いて、クロロホルムを溶離液として、カラムクロマトグラフィーで分離精製を行った。淡黄色の6,11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2,3- α :2',3'-c]カルバゾール-2,9,14-トリ[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]、(5-[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール]-インドール三量体)0.14g

40

50

(収率49%)を得た。

【0066】

(組成物の調整)

実施例2で合成した6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリ[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]5質量部、クロロホルム50質量部を室温で溶解して組成物を調製した。

【0067】

(素子の作製と評価)

陽極である洗浄したITO(インジウムスズ酸化物)ガラス基板に、前記調製した組成物を、スピンコート(500rpm×5秒+2000rpm×60秒)し、100℃で10分間乾燥し、50nmの厚みで成膜した。その上に、陰極として、マグネシウム-銀合金(Mg:Ag=9:1質量比)を150nmの厚みで蒸着して発光素子を作製した。この素子に、10.0Vの電圧を印加したところ、約100mA/cm²の電流値を観測し、均一なEL発光が観察された。発光スペクトルのピークは440nmであり、発光色は青色であった。

【0068】

【発明の効果】

以上の説明のように、本発明によれば、インドール三量体骨格を有する新規化合物と、その製造方法が提供できた。これらのインドール三量体骨格を有する新規化合物は、各種帯電防止、制電、コンデンサ、電池、EMIシールド、化学センサー、表示素子、有機EL材料、液晶材料、非線形材料、フォトリソグラフィ材料、防錆剤、接着剤、繊維、帯電防止塗料、電着塗装、メッキプライマー、静電塗装用導電性プライマー、電気防食等に幅広く適用可能である。その中でも特に、構造がシンプルで、輝度、発光効率、長寿命化、成膜性について満足できる発光素子の提供が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例1における、6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリテトラゾール、(インドール-5-テトラゾール三量体)のNMRチャート(溶媒:DM₂SO- d_6)である。

【図2】実施例1における、6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリテトラゾール、(インドール-5-テトラゾール三量体)のIRチャートである。

【図3】実施例2における、6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリ[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]、(5-[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]-インドール三量体)のNMRチャート(溶媒:DM₂SO- d_6)である。

【図4】実施例2における、6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリ[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]、(5-[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]-インドール三量体)のIRチャートである。

【図5】実施例2で合成した、6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリ[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]、(5-[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]-インドール三量体)のDSCチャートである。

【図6】実施例2で合成した、6, 11-ジヒドロ-5H-ジインドロ[2, 3- α :2', 3'-c]カルバゾール-2, 9, 14-トリ[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]、(5-[5-(4-n-ヘキシルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]-インドール三量体)の(a)90℃、及び(b)110℃における偏光顕微鏡観察の結果である。

10

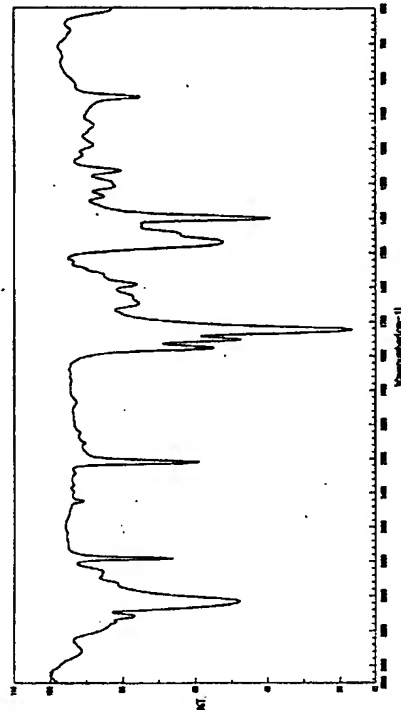
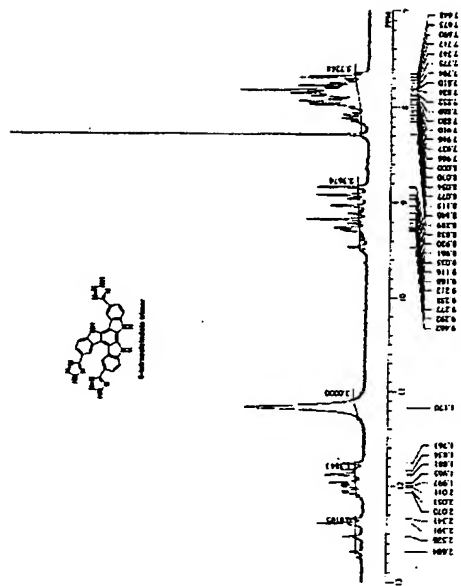
20

30

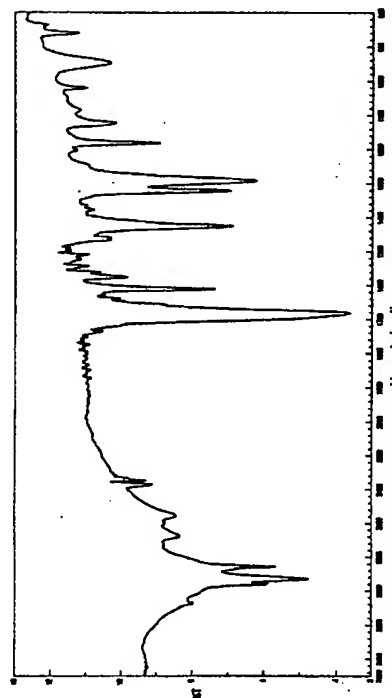
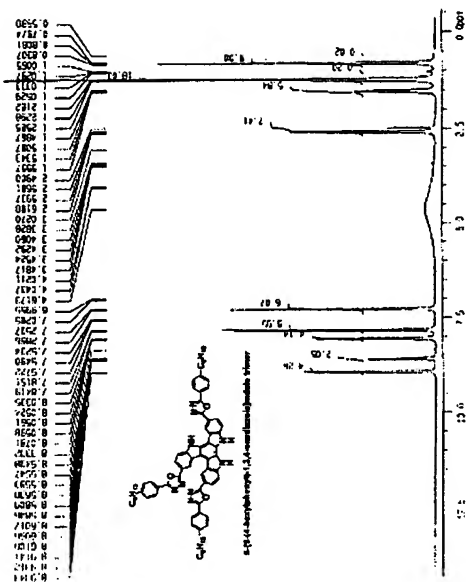
40

50

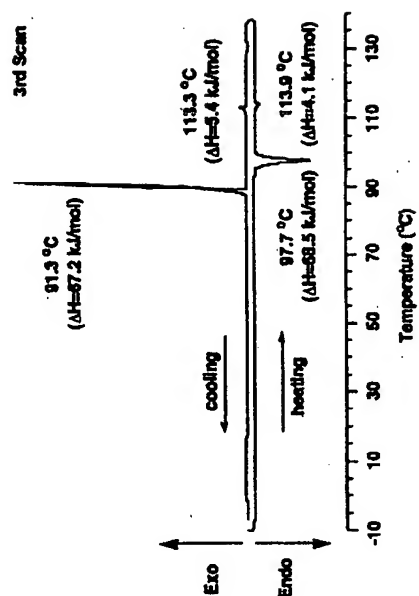
【 図 2 】



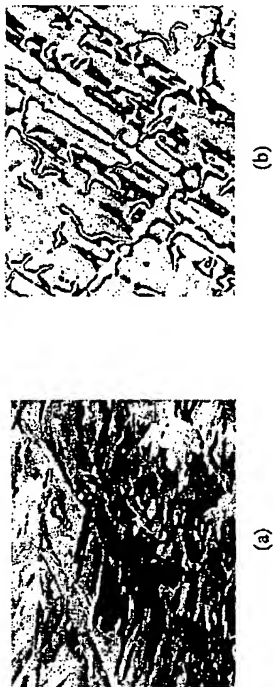
【 図 4 】



【 図 5 】



【 図 6 】



BEST AVAILABLE COPY

フロントページの続き

(72)発明者 藤 隆司

神奈川県横浜市鶴見区大黒町10番1号 三菱レイヨン株式会社化成品開発研究所内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB11 AB18 DB03 FA01

4C050 AA01 AA08 BB04 CC04 DD01 EE03 FF01 GG01 HH04

4H027 DH01 DH02 DH03 DL01 DL02 DL03